Aus dem Institut für Atom- und Festkörperphysik
der Freien Universität Berlin

Kernspinrelaxation von ^{132m}Xe in flüssigem Tellur

INAUGURALDISSERTATION
zur Erlangung der Doktorwürde
der Freien Universität Berlin
Fachbereich Physik

vorgelegt von
Jose Hadijuana
aus Bandung – Indonesien

Berlin
Juni 1976

Aus dem Institut für Atom- und Festkörperphysik
der Freien Universität Berlin

Kernspinrelaxation von ^{132m}Xe in flüssigem Tellur

INAUGURALDISSERTATION
zur Erlangung der Doktorwürde
der Freien Universität Berlin
Fachbereich Physik

vorgelegt von
Jose Hadijuana
aus Bandung – Indonesien

Berlin

Juni 1976

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

1. Gutachter: Prof. Dr. D. Quitmann

2. Gutachter: Prof. Dr. K.-H. Lindenberger

Tag der letzten mündlichen Prüfung: 16.12. 1976

Zusammenfassung

Mit der TDPAD-Methode werden der g-Faktor und die Relaxation des Zustandes ^{132m}Xe ($T_{1/2}$ = 8ms, E = 2753 keV, $(\nu_{11/2})^2 10^+$) in flüssigem Tellur untersucht. Die Anregung erfolgt durch die Reaktion $^{130}Te(\alpha,2n)^{132}Xe$.

Als Meßwert für den g-Faktor ergibt sich g = 0.196±0.003. Im übrigen wird die Lebensdauer zu $T_{1/2}$ = (7.96±0.03)ms sehr genau bestimmt. Die Kernspinrelaxationszeit τ_R wird im Temperaturbereich von 700°-1050° K gemessen; sie beträgt etwa 1,4 ms bei 700° K, 2,6 ms bei 930° K und 2,1 ms bei 1050° K.

Zunächst wird die Größe der Relaxationsrate diskutiert. Das Hyperfeinfeld von Xenon in flüssigem Tellur wird durch ein einfaches Modell (quasi molekulare Näherung) dargestellt. Dieses Modell geht aus von einer Van der Waals-Bindung zwischen den Xe- und den Te-Atomen. Außerdem wird eine metallische Näherung diskutiert,um die Quadrupolrate abzuschätzen.

Weiterhin wird die Temperaturabhängigkeit der Relaxation mit einem Ansatz gefittet, der den Quadrupolanteil mit einem Diffusionsmodell und den magnetischen Anteil mit einer Korringa- bzw. modifizierten Korringarelation erklärt. Im Gegensatz zum Ergebnis mit quasi molekularer Näherung sagt dieser Ansatz einen großen Beitrag der magnetischen Relaxationsrate im ganzen Temperaturbereich voraus.

Die vorliegenden Daten erlauben keine eindeutige Aussage über die Richtigkeit des einen oder des anderen Modells. Daher werden am Schluß mögliche weitere Einflüsse diskutiert.

Inhaltsverzeichnis

I	Einleitung	1
II	Meßanordnung	3
	II-1 Meßprinzip	3
	II-2 Kernreaktion und Termschema des ^{132}Xe	7
	II-3 Targets	8
	II-4 Magnetfeld	13
	II-5 Strahlführung	14
	II-6 Detektoren und Elektronik	15
III	Messungen und Ergebnisse	20
	III-1 Messungen	20
	III-2 Auswertung und Ergebnisse	22
	III-2-1 Lebensdauer	24
	III-2-2 g-Faktor	27
	III-2-3 Relaxationszeit	28
IV	Diskussion	40
	IV-1 Magnetisches Moment	40
	IV-2 Spin-Gitter-Relaxation	42
	IV-2-1 Magnetische Relaxation	43
	IV-2-2 Quadrupolrelaxation	44
	IV-3 Größe der Relaxationsrate	48
	IV-3-1 Relative Größe magnetischer und quadrupolarer Beiträge zum Gesamtrelaxation	49

IV-3-2 Theoretische Abschätzungen für R_M und R_Q 51

IV-3-3 Theoretische Abschätzung der Hyperfeinfelder von Xe in flüssigem Tellur: Quasi-molekulare Näherung 54

IV-3-3-1 Modifizierte Buckingham-Potential zur Bestimmung der Bindungsenergie von XeTe 57

IV-3-3-2 Abschätzung der Bindungsenergie des XeTe-Systems aufgrund experimenteller Daten 62

IV-3-4 Modifizierte Adrian-Näherung 66

IV-3-5 Metallische Näherung 69

IV-3-6 Zusammenfassung der Ergebnisse des Kap. IV-3 71

IV-4 Temperaturabhängigkeit der Relaxationsrate 72

IV-4-1 Quadrupolrelaxation mit Diffusionsansatz 72

IV-4-2 Ansatz mit Quadrupolrelaxation und magnetischer Relaxation 74

IV-4-2-1 Korringarelation als Ansatz für magnetische Relaxation 74

IV-4-2-2 Modifizierte Korringarelation für magnetische Relaxation 77

IV-4-3 Zusammenfassung der Ergebnisse des Kap. IV-4 81

V Schlußbemerkung 82

VI Anhang 84

VI-1 Beimischungskoeffizient $(f_{6s})^2$ 84

VI-2 Parameter des modifizierten Buckingham-Potentials des XeTe-Systems 86

VI-3 Aktivierungsenergie der thermischen aktivierten Prozesse in flüssigem Tellur 89

VII Literaturverzeichnis 94

I. Einleitung

Bisherige Messungen an flüssigem Tellur zeigen, daß flüssiges Tellur an der Grenze zwischen flüssigen Halbleitern und flüssigen Metallen liegt. Elektrische Leitfähigkeit (TieZ 63) und Knight Shift (CabF 69, Warr 72) nehmen mit der Temperatur zu; dieses Verhalten ist typisch für Halbleiter. Andererseits liegen die Knight Shift Werte in der Größenordnung für Metalle, und die Veränderung der elektrischen Leitfähigkeit innerhalb eines großen Temperaturbereichs ist schwächer als für die normalen Halbleiter (z.B. Ge, Se).

Cabane et al. (CabF 71) diskutierten die Temperaturabhängigkeit der Struktur von flüssigem Tellur und fanden einen stetigen Übergang von zwei- zu dreifach koordinierten Atomen bei zunehmender Temperatur.

Die mit der NMR-Methode beobachtete magnetische Relaxationsrate (Warr 72) zeigt auch, daß flüssiges Tellur keine normalen metallischen Eigenschaften hat. Eine weitere Meßgröße, die eine Aussage über das dynamische Verhalten macht, ist die Quadrupolrelaxation. Eine Messung dieser Größe ist jedoch bei Tellur nicht möglich, weil alle stabilen Tellurisotope entweder Spin I=0 oder I=1/2 besitzen.

Durch Implantation eines Sondenkerns mit $I \geq 1$ wird es jedoch möglich, die Quadrupolrelaxation in flüssigem Tellur zu untersuchen. Ein hierfür geeignetes Isomer läßt sich z.B. durch eine Kernreaktion erzeugen. Insbesondere bietet sich der angeregte Zustand $I^{\pi}=10^{+}$ in ^{132}Xe an (BrilH 67, KerL 71) wegen seiner langen Le-

bensdauer ($T_{1/2}$=8,4 ms), seines relativ großen Anisotropieparameters A_2 und wegen seiner geeigneten γ-Kaskade. Der g-Faktor dieses Zustandes ist unbekannt und kann zusätzlich aus den Messungen der TDPAD-Methode ermittelt werden.

Der Zustand $I^{\pi}=10^{+}$ in ^{132}Xe läßt sich leicht durch eine (α,2n)-Reaktion vom ^{130}Te-Isotop aus bevölkern. Allerdings ist der Sondenkern ein Fremdkern, und man beobachtet dessen Wechselwirkung mit der Tellurumgebung.

Es ist das Ziel dieser Arbeit, diese Möglichkeiten auszunutzen, um die Quadrupolrelaxation in flüssigem Tellur und das Verhalten eines Fremdatoms in einem flüssigen Halbleiter zu untersuchen, und damit die früheren Arbeiten über Hyperfeinwechselwirkung (Hfw) in Tellur zu ergänzen.Hauptproblem im gegenwärtigen Stadium ist die Zerlegung der beobachteten Relaxationsraten in magnetischen und elektrischen Anteil.

II. Meßanordnung

II-1 Meßprinzip:

Das magnetische Moment und die Kernspinrelaxation wurden mit der Methode der zeitdifferentiellen Beobachtung der Spinrotation nach Ablauf der Kernreaktion gemessen. (TDPAD: Time Differential Perturbed Angular Distribution, auch SPIRO-Methode genannt.) Das Prinzip der SPIRO-Methode ist in der Literatur (siehe z.B. Reck 72) bereits häufig dargestellt worden. Hier wird das Prinzip durch eine kurze Beschreibung erläutert.

Durch die Kernreaktion werden Kerne in angeregten Zuständen mit ausgerichteten Spins erzeugt, wobei die Stärke der Ausrichtung im Gegensatz z.B. zur klassischen NMR-Methode temperaturunabhängig ist. Wählt man die Strahlrichtung als Quantisierungsachse, so werden im allgemeinen magnetische Unterzustände mit kleinen m-Quantenzahlen bevorzugt besetzt. Dadurch zeigt die nachfolgend beobachtete emittierte γ-Strahlung im allgemeinen eine anisotrope Winkelverteilung der Form:

$$W(\theta) = 1 + \sum_{k=\text{gerade} \geq 2} B_K \cdot F_K \cdot P_K(\cos\theta) \qquad (2\text{-}1)$$

Dabei sind die Koeffizienten B_K konstante, meist unbekannte Parameter, die die Ausrichtung durch die Kernreaktion beschreiben. Die Koeffizienten F_K charakterisieren den elektromagnetischen Übergang, und θ ist der Winkel zwischen Emissionsrichtung und Teilchenstrahlrichtung.

Wirkt am untersuchten Kernspinsystem eine Störung, z.B. durch das von außen angelegte Magnetfeld $\vec{B}$ oder durch die inneren Felder der Kernumgebung, so können diese Störungen über die Verän-

derung der Winkelverteilung der emittierten γ-Strahlung beobachtet werden.

Pulst man den die Kernreaktion auslösenden Teilchenstrahl und legt ein zeitlich konstantes, homogenes Magnetfeld $\vec{B}$ senkrecht zur Ebene an, die durch die Strahlachse und die Detektoren gebildet wird, so bewirkt die Larmorpräzession der Kernspins eine Drehung der Winkelverteilung um den Winkel $\omega_L \cdot t$:

$$W(\Theta) \rightarrow W(\Theta,t,B) \quad ; \quad \Theta \rightarrow \Theta - \omega_L \cdot t \tag{2-2}$$

mit der Larmorfrequenz

$$\omega_L = \frac{g \mu_N B}{\hbar} \tag{2-3}$$

Hierin bedeutet g den g-Faktor des Kernzustandes, μ_N das Kernmagneton und t die Zeit nach der Anregung des beobachteten Kernzustandes.

Die Drehung der Winkelverteilung führt zur bekannten sinusförmigen Modulation der unter einem festen Winkel Θ beobachteten γ-Intensität. Infolge des exponentiellen Zerfalls des angeregten Zustandes (nach der Lebensdauer τ_N) ist die beobachtete γ-Intensität zur Zeit t nach der Anregung gegeben durch

$$I(\Theta,t,B) \sim e^{-t/\tau_N} \cdot W(\Theta - \omega_L t) \tag{2-4}$$

Meistens braucht in der Winkelverteilung nur das Glied mit k=2 berücksichtigt zu werden (siehe IV-2-1). Dadurch vereinfacht sich die Gleichung auf

$$I(\Theta,t,B) \sim e^{-t/\tau_N} \left[1+A_2 \left\{\frac{1}{4}+\frac{3}{4} \cos 2(\Theta-\omega_L t)\right\}\right] \qquad (2\text{-}5)$$

mit $A_2 = B_2 \cdot F_2$

Bisher war angenommen worden, daß die Ausrichtung der Kernspins bis zum γ-Zerfall erhalten bleibt. Verliert der Kernspin während der Lebensdauer seine anfängliche Ausrichtung B_2 durch Wechselwirkung mit inneren Störfeldern, so wird die Anisotropie der emittierten γ-Strahlung geschwächt. Für statistisch fluktuierende Störfelder nimmt die Ausrichtung in guter Näherung exponentiell mit der Zeit ab (vgl. AbrP 53). Gleichung (2 -5) lautet dann

$$I(\Theta,t,B) \sim e^{-t/\tau_N} \left[1+e^{-t/\tau_R} A_2 \left\{\frac{1}{4}+\frac{3}{4} \cos 2 (\Theta-\omega_L t)\right\}\right] \qquad (2\text{-}6)$$

Hierin ist τ_R die Relaxationszeit.

Bei der zeitlich differentiellen Beobachtung wird die Intensitätsmodulation als Funktion der Zeit nach dem Anregungspuls direkt gemessen. Die Relaxationszeit kann dann als Dämpfung der Modulationsamplitude direkt beobachtet werden.

Damit die Messungen erfolgreich durchgeführt werden können, wird ein gepulster Teilchenstrahl benötigt, der folgende Voraussetzungen erfüllt (vgl. Abb. II-e):

a. Der zeitliche Abstand zweier Strahlpulse T_o muß größer sein als die Lebensdauer τ_N des Zustandes. Diese Voraussetzung verhindert Überlagerungen der Intensitätsmodulation aus ver-

schiedenen Strahlimpulsen, die im allgemeinen zu einer Dämpfung der Anisotropie führen werden. In der Praxis wird $T_o \gtrsim 2\tau_N$ gewählt.

b. Die Modulationsperiode $T_M = \frac{2\pi}{2\omega_L} = \frac{\pi}{\omega_L}$ muß kleiner sein als die Relaxationszeit. Wird diese Voraussetzung nicht erfüllt, so wird infolge der starken Dämpfung durch die Relaxation keine Intensitätsmodulation beobachtet werden können. Im allgemeinen wird $T_M \leq \frac{1}{3}\tau_R$ gewählt, damit die Modulation über mehrere Oszillationen beobachtet werden kann.

c. Die Strahlimpulsbreite ΔT muß klein sein gegen T_M. Falls $\Delta T = T_M$ ist, und der Strahlimpuls ein Kastenprofil hat, so erfolgt eine vollständige Auslöschung der Anisotropie. Im allgemeinen wird $\Delta T \simeq 0.25\ T_M$ gewählt, um eine möglichst hohe Strahlintensität zu erzielen.

Im Fall $\tau_R > \tau_N$ läßt sich die γ-Strahlung über mehrere Lebensdauern τ_N beobachten. Auf Grund von Untergrundproblemen sollten aber mehrere Oszillationen während einer Lebensdauer beobachtet werden.

Diese und die anderen Voraussetzungen lassen sich im allgemeinen bei geeigneter Wahl der Magnetfelder erfüllen.

II-2 Kernreaktion und Termschema des ^{132}Xe

Zur Messung der Quadrupolrelaxation in flüssigem Tellur wird ^{132}Xe als Fremdatom benutzt. Das Termschema und die isomeren Zustände in ^{132}Xe wurden von Brinkmann et al. (BriH 67) und Kerek et al. (KerL 71) untersucht (Abb. II-a).

Der 10^+-Zustand zerfällt über genau eine Kaskade in den Grundzustand. Die Zwischenniveaus haben im Vergleich zum 10^+-Zustand sehr geringe Lebensdauer (< 90 ns), so daß die in diesem Experiment beobachteten Abklingzeiten der γ-Kaskade durch die Lebensdauer des 10^+ Isomers bedingt sind. Im Prinzip eignen sich alle vier Übergänge der γ-Kaskade zur Beobachtung der Relaxation des 10^+-Zustandes.

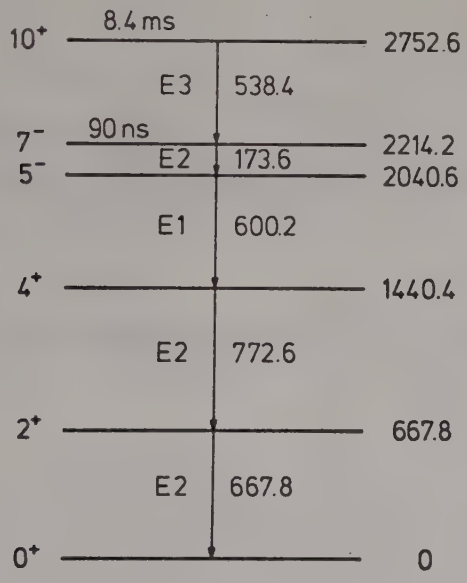


Abb. II-a: Termschema $^{132}_{54}Xe_{78}$

Besonders günstig ist der 772-keV Übergang. Seine Energie kann mit dem zur Verfügung stehenden Detektor NaJ (Tl) gut aufgelöst werden. Das Signal-Rausch-Verhältnis ist bei diesem Übergang größer als bei den anderen Übergängen. Außerdem ist der Anisotropieparameter der 772-keV-Linie relativ groß[+], was zu einer guten Modulation bei den Kernspinrelaxationsmessungen führt.

Der 10^+-Zustand läßt sich ohne wesentliche Störungen von einem ^{130}Tellurtarget mit einer (α,2n)-Reaktion bevölkern. Die Schwellenenergie für die Kernreaktion beträgt 14.53 MeV.

II-3 Targets

Das Isotop ^{130}Te ist zu 34,48% im natürlichen Gemisch enthalten. Um bei den Kernreaktionen möglichst wenig Untergrund zu erzeugen, wurde ein hochangereichertes ^{130}Te-Target (99,5%) verwendet[+].

[+]Der Anisotropieparameter ist nach den Tabellen von Yamazaki (Yam 67) A_2=0.5. Experimentell ergibt sich bei Anregungsenergien von 33 MeV für A_2 der Wert 0.20±0.04.

[++]Das ^{130}Te Tellurisotop wurde vom Oak Ridge National Laboratory in Pulverform geliefert. Nach Angaben der Firma enthielt das Isotopenmaterial keine meßbare Verunreinigung durch paramagnetische Elemente (Cr,Co,Fe); falls überhaupt vorhanden sollte ihr Anteil weniger als 0.05% betragen.

Flüssiges Tellur verdampft schon bei den hier interessierenden Temperaturen und ist chemisch sehr aggressiv. Daher muß ein besonderer Tiegel verwendet werden. (siehe Abb. II-b).

Das pillenförmige Tellur-Target befindet sich in einer 1mm tiefen Vertiefung (6mm Durchmesser) eines Kohlentiegels (Sorte EK50 von Ringsdorf Werke, Bonn). Es ist etwa 170 mg schwer und wird aus dem pulverförmigen Isotop durch Schmelzen unter Argonschutzgas hergestellt.

Vor dem Target befindet sich ein dünnes Glimmerplättchen von etwa 5µmDicke. Das Plättchen wird von einem Kohlendeckel mit einer Bohrung von 7mm Durchmesser gehalten.

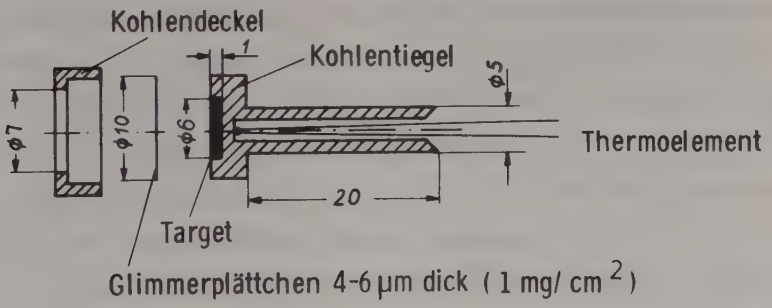


Abb. II-b: Tiegel für Tellurtarget. Dieser Tiegel wird für Messungen bis 950°K (Run 11 und 12) verwendet. Für Messungen bis 1050°K (Run 14) wird ein Tiegel mit einer größeren Dichtefläche verwendet.

Der Tiegel mit dem Target wird auf das Ende eines 12 cm langen Keramikrohres (Sorte Alsint von Fa. Haldenwanger, Berlin) gesteckt und mit einer am Rohr bifilar gewickelten Heizwendel aus Tantal (0,5mm Ø Draht) geheizt. Ein Keramikrohr wird über den Tiegel samt Heizwendel geschoben und dient als Strahlungsreflektor, so daß die Temperatur am Targetort gleichmäßiger ist und weniger Heizleistung benötigt wird. Für eine Temperatur von 1000°K wird eine Heizleistung von etwa 130 Watt benötigt. Diese Leistung gilt für eine He-Atmosphäre von 760 Torr in der Meßkammer.

Zur Temperaturmessung wird ein Thermoelement (Pallaplat von Fa. Heraeus, Hanau) in die Bohrung des Tiegels dicht hinter der Targetpille eingeführt. Die Temperaturen am Targetort weichen von den mit dem Thermoelement gemessenen Temperaturen ab. Deshalb müssem die Temperaturen des Targets aus den von dem Thermoelement gelieferten Wertenmit Hilfe eines temperaturabhängigen Eichfaktors berechnet werden. Dieser Eichfaktor wurde mit einem Pyrometer bzw. mit einem zweiten am Targetort angebrachten Thermoelement ermittelt. Bei Temperaturen von 1050°K am Targetort weichen die mit dem in der Bohrung des Tiegels angebrachten Thermoelement gemessenen Temperaturen um +170° von dem tatsächlichen Wert am Targetort ab.

Kurve A in Abb. II-c zeigt die Eichung, die mit einem zweiten Thermoelement am Targetort aufgenommen wurde. Das Target wurde durch eine Kohlepille simuliert. Die Eichung gilt für den Tiegel,der für Run 11 und 12 verwendet wurde. Kurve B ist die Eichkurve, die mit dem Pyrometer aufgenommen wurde. Sie gilt für den Tiegel, der für Run 14 verwendet wurde.

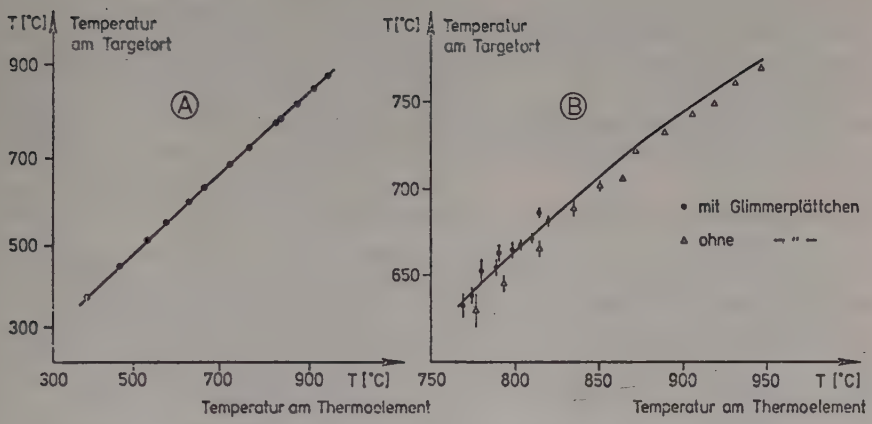


Abb. II-c: Eichkurven der Temperaturmessung.

Entsprechend diesen Eichkurven ist der Fehler der Temperaturmessung etwa $\pm 5^{o}$ im Bereich bis $630^{o}C$, bei höheren Temperaturen etwa $\pm 10^{o}$. Größere Temperaturunsicherheiten von etwa $\pm 30^{o}C$ sind allerdings noch deshalb in Rechnung zu stellen, da an Stelle von Tellur beim Eichen ein Kohlekörper verwendet wurde, dessen thermischer Kontakt zum Tiegel relativ unabhängig von der Temperatur ist, wogegen das Tellur bei höherer Temperatur sich infolge seines hohen Dampfdruckes vom Tiegelboden löst und sich auf die Glimmerscheibe setzt. Die Temperaturschwankungen am Thermoelement konnten durch einen Temperaturregler (von Fa. Knauer, Berlin) kleiner als 1^{o} gehalten werden.

Die geringfügige lokale Erwärmung durch den α-Strahl, der etwa 0,3 Watt/cm^3 in einer 0,3 mm Oberflächenschicht deponiert, verursachte eine Temperaturdifferenz von etwa 1^o über die Dicke der Tellurschicht (1 mm). Diese konnte aufgrund der größeren Fehlergrenzen bei der Temperatureichung außer Acht gelassen werden.

Die Targethalterung steckt auf einem Flansch in einem Glasrohr (etwa 25-40mmØ; 1,5 mm Wandstärke) (Abb. II-d). Am anderen Ende der Glaskammer befindet sich eine Al-Blende mit einer Öffnung von 8 mm Durchmesser, die mit einer Tantalfolie von etwa 1,5 µm Dicke abgedeckt ist, um die Kammer vom Vakuumsystem des Zyklotrons zu trennen. Die Glaskammer ist zwischen den Polschuhen des Elektromagneten fest justiert.

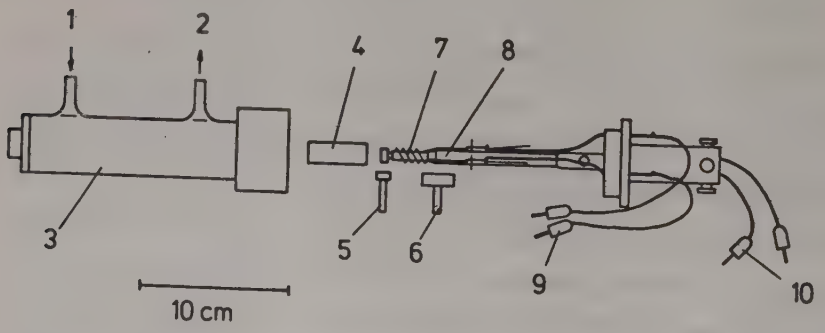


Abb. II-d: Targetaufbau

1 He-Gaseinlaß, 2 He-Gasauslaß, 3 Glaskammer, 4 Strahlungsreflektor, 5 Target für Run 11 und 12, 6 Target für Run 14, 7 Heizdraht, 8 Keramikrohr, 9 Anschluß für die Heizung, 10 Anschluß für das Thermoelement.

Die Kammer wurde ständig mit einem gleichmäßigen, schwachen Heliumstrom bei Atmosphärendruck gespült. Trotzdem verdampft das Tellur während der Messungen bei Temperaturen oberhalb 1000°K stark (etwa zur Hälfte), da das Glimmerplättchen nicht am Tiegel festgeklebt werden kann.

Im allgemenen dauerte eine Messung etwa eine Stunde. Über 1050°K verdampfte es innerhalb von etwa 15 Minuten vollständig, so daß eine sinnvolle Messung nicht mehr möglich war.

II-4 Magnetfeld

Das Magnetfeld B wurde von einem Bruker-Elektromagneten (Typ C) erzeugt. Ein Generator von derselben Firma lieferte den stabilisierten Strom. Die Polschuhe hatten einen Durchmesser von 10 cm, und der Abstand zwischen den Polschuhen betrug etwa 4 bis 8 cm, abhängig von der verwendeten Glaskammer.

Das für die Experimente verwendete Magnetfeld betrug etwa 8.3 Gauß. Dieser Wert liegt unterhalb des Remanenzfeldes des Magneten, so daß der Strom im Magneten umgepolt werden mußte, um die gewünschte Stärke des Magnetfeldes einstellen zu können.

Das Magnetfeld an der Stelle des Targets wurde mehrmals mit einer genauen Hallsonde[+] bestimmt. Während der Messungen wurde das Magnetfeld ständig auf Konstanz überwacht. Dazu wurde die Hallsonde oberhalb der Kammer (etwa 15 mm von der Targetmitte entfernt) angebracht. Damit konnte festgestellt werden, ob die Feldschwankungen, die bei der Magnetfeldmessung beobachtet wurden, durch Störfelder und Stromschwankungen oder durch thermische Effekte in der Hallsonde verursacht wurden. Die Feldschwankungen wurden bei der Ermittlung des tatsächlichen Magnetfeldes am Targetort berücksichtigt.

Die Ungenauigkeiten bei der Justierung der Sonde betrugen etwa 0,05 G, dazu wurden noch 0,05 G als Fehler durch die Stromschwankungen berücksichtigt, so daß der Fehler der Magnetfeldmessung insgesamt etwa 0,10 Gauß betrug.

II-5 Strahlführung

Die Experimente wurden am Strahlrohr Nr. 5 des Zyklotrons der Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe, durchgeführt. Die maximale α-Energie von 102 MeV wurde mittels mehrerer Berylliumplatten mit einer Gesamtdicke von etwa 3.7 mm auf etwa 33 MeV reduziert. Mit insgesamt 4 Quadrupollinsendubletts - 3 davon hinter dem Energievariator -, und einer Tantalblende unmittelbar vor dem Target wurde der Ionenstrahl auf das Target fokussiert.

[+] Fa. Bell Inc. U.S.A.: Hallsonde Typ STL 6-0404;
Digitales Gaußmeter Typ 660

Zunächst wurde der Strahl nacheinander auf 2 ZnS-Leuchtschirme fokussiert, von denen der zweite an der Stelle des Targets in den Strahlengang gebracht werden konnte. Anschließend wurde das Verhältnis des Strahlstroms auf das Target und auf die Tantalblende optimiert. Typische Werte waren bei 5 mm Blendendurchmesser 4:1 Targetstrom zu Blendenstrom.
Zur gepulsten Aktivierung des ^{132}Xe-Isomers eignete sich am besten die Ionenquellenpulsung auf Grund der langen Lebensdauer von 8 ms des untersuchten Zustandes. Die Ionenquellenpulsung wurde durch einen Triggerimpuls von der Elektronik ausgelöst. Die Intensität des Strahls betrug vor der Extraktion aus dem Zyklotron etwa 40 nA und am Target etwa 3 nA bei einem Tastverhältnis 100 µs:20ms.

II-6 Detektoren und Elektronik

Für den Nachweis der 772 keV-Strahlung des ^{132}Xe wurden zwei NaJ(Tl)-Kristalle (2" x 1,5" Ø) auf Multipliern, Typ EMI 9536S, benutzt. Die beiden γ-Detektoren lagen mit der Strahlachse in einer Ebene senkrecht zum Magnetfeld und bildeten einen Winkel von 45° bzw. 135° mit der Strahlachse. Ihr Abstand vom Te-Target betrug etwa 10 cm.

Die Multiplier waren durch mehrere μ-Metallrohre gegen den Einfluß des Magnetfeldes geschützt. Damit die Multiplier durch die prompte γ-Strahlung nicht überlastet wurden, kompensierte während der Dauer des Strahlpulses eine Gegenspannung die zwischen

Fokussierelektrode und erster Dynode liegende Spannung zu Null (Tottastung des Detektors). Die Tottastungspulse waren etwa 180µs lang, die Strahlpulse etwa 100µs (siehe Abb. II-e).

Das Blockschaltbild zur Spinrotationsmessung ist in Abb. II-f dargestellt.

Ein Viertaktgenerator, Modell PG14 vom Hahn-Meitner-Institut sorgte für die zeitliche Steuerung des gesamten Versuchsablaufs in der folgenden Reihenfolge:

1 Triggerung der Ionen-Quelle
2 Starten des HP-Multiscale Analysators
3 Tottastung der Detektoren
4 Wiederholung des Pulsprogramms

Die Zeitspektren wurden mit dem HP-Multiscale Analysator (HP 5678) nach jedem Strahlpuls registriert. Zu diesem Zweck wurden die Signale der beiden Detektoren über einen Linearverstärker zur Selektion der richtigen Energie auf je einen Differential-Diskriminator gegeben. Mit einem Delay-Gate-Generator wurden die Signale anschließend auf die richtige Pulsform gebracht und auf die Eingänge 1 und 2 des 8-fach Multiscaleanalysators gegeben.

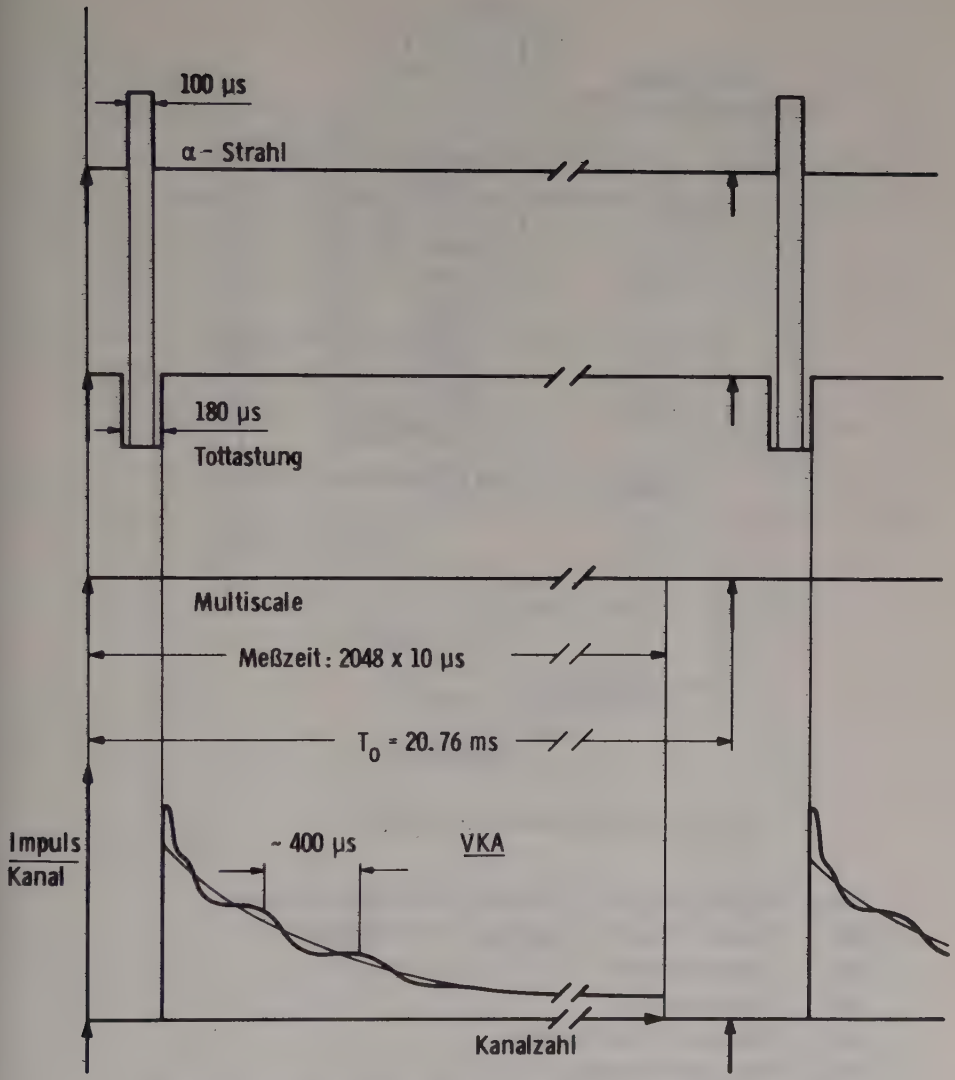


Abb. II e: Zeitplan bei der Spinrotationsmessung.
Der Startpunkt jedes Zyklus ist durch einen senkrechten Pfeil gekennzeichnet

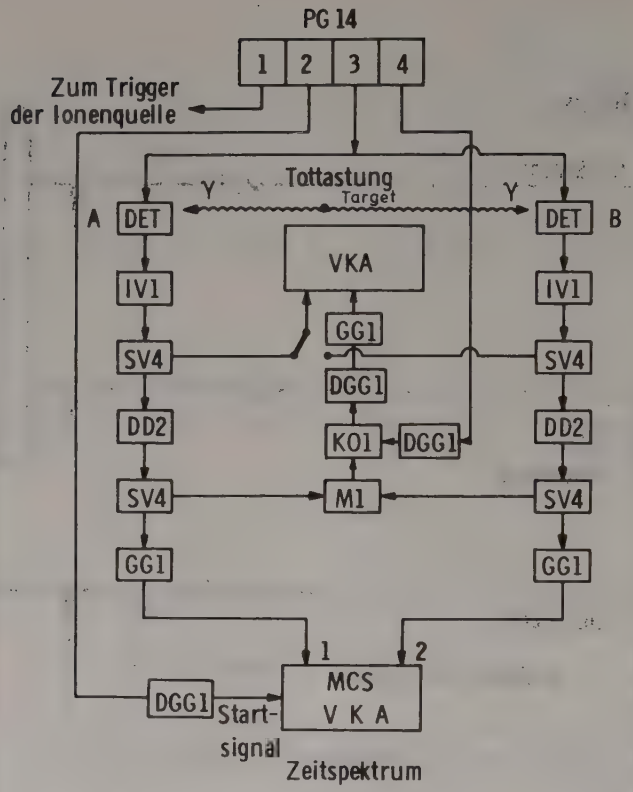


Abb. II f: Blockschaltbild der Elektronik

PG14 : Viertaktgenerator (z. B. 30µs/ 50µs/ 180µs/ 2050 µs)
DET : Detektor (NaJ (Tl) , Multiplier, Vorverstärker)
IV1 : Linearverstärker
SV4 : Signalverteiler
DD2 : Differential Diskriminator
DGG1 : Delay Gate Generator
KO1 : Koinzidenz
M1 : Digitaler Mixer
GG1 : Gate Generator
MSC/ VKA : Multiscale der Vielkanal-Impulshöhen-Analysator

Da die Einstellung des Energiefensters laufend überwacht werden mußte, diente ein zweiter Vielkanalanalysator (VKA) als Impulshöhenanalysator (PHA) zur Beobachtung der Energiespektren der verzögert emittierten γ-Quanten. An den Eingang des PHA konnten alternativ die Signale der Detektoren A oder B gegeben werden. Der hier benutzte HP-VKA gestattete gleichzeitige Energiemessung in mehreren Zeitfenstern. Das ist der Einfachheit halber im Schaltbild nicht dargestellt. Zur Kontrolle des Energiefensters konnten die Signale von Diskriminator A oder B mit dem Eingangssignal am PHA in Koinzidenz oder Antikoinzidenz gebracht werden.

III. Messungen und Ergebnisse

III-1 Messungen

Bei der Anregung des 10^+ Zustandes von ^{132}Xe durch die (α,2n)-Reaktion mit einer α-Energie von 33 MeV traten die 772-, 668-, und die 600 keV-Linien der γ-Kaskade stark hervor, während die 538 keV-Linie von der 511 keV-Störlinie nicht zu trennen war. (s. Abb. IIIa)

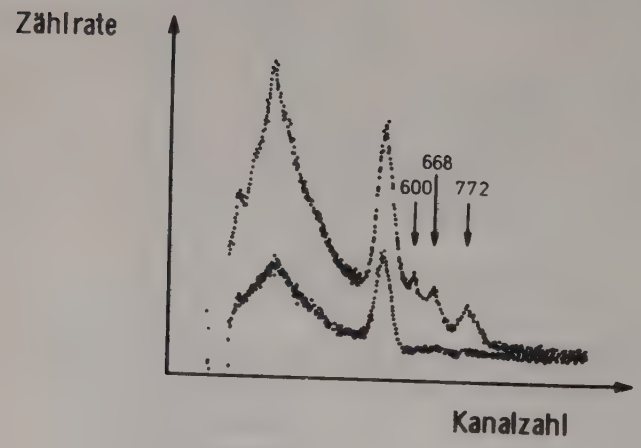


Abb. IIIa Verzögertes Energie-Spektrum des ^{132}Xe in einem Zeitfenster von 100 µs bis 20,75 ms (oberes Spektrum) und der Untergrund (unteres Spektrum). Die Pulsbreite betrug etwa 100µs, der Pulsabstand etwa 20,8 ms.

Die Spinrotation des Isomers wurde mit Hilfe der 772 keV-Linie in einem Magnetfeld von etwa 8.3 Gauß im Temperaturbereich von 700°K bis 1050°K aufgenommen. Typische totale Zählraten waren etwa 5 kHz. Abb. IIIb zeigt ein typisches Zeitspektrum.

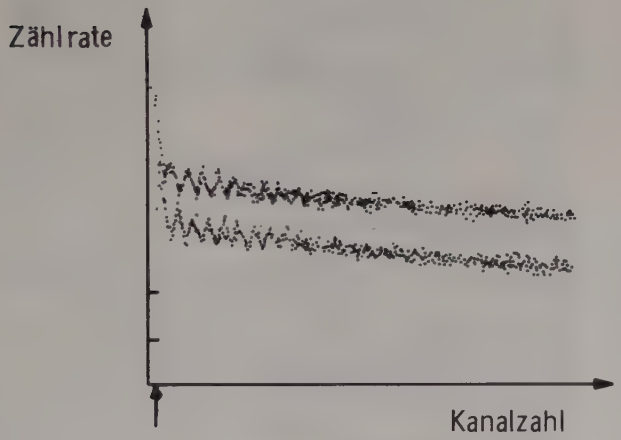


Abb. IIIb Zeitspektrum der 772 keV-Linie des ^{132}Xe Isomers. Die Temperatur betrug 796°K . Der Pfeil kennzeichnet den Zeitpunkt des Anregungspulses. Das obere Spektrum stammt von Detektor A(Θ=45°), das untere Spektrum von Detektor B(Θ=135°). Die beiden Striche kennzeichnen die Nullpunkte der beiden Spektren.

Die gesamten Messungen wurden in drei verschiedenen auf über ein Jahr verteilten RUNS (Run 11, 12, 14) mit verschiedenen Tellurproben und Tellurtiegeln durchgeführt.

III-2. Auswertung und Ergebnisse

Die beobachteten zeitabhängigen Spinrotationsspektren I(t) wurden mit der Gleichung (2 -6) unter Berücksichtigung des Untergrundes I_o nach der Methode der kleinsten Quadrate mit folgender Gleichung ausgewertet:

$$I(t) = I_o + I_1 \, e^{-t/\tau_N} \left[1 + e^{-t/\tau_R} \cdot A_2 \{ \tfrac{1}{4} + \tfrac{3}{4} \cos 2(\theta - \omega_L \cdot t) \} \right] \qquad (3\text{-}1)$$

Dabei sind:

t	:	Zeit nach dem Anregungspuls
I_o	:	Intensität des zeitunabhängigen Untergrundes
I_1	:	Intensität der 772 keV-Linie bei t=0
τ_N	:	Lebensdauer des angeregten Kernzustandes
τ_R	:	Relaxationszeit
A_2	:	Anisotropieparameter
θ	:	Winkel zwischen dem Detektor und dem Strahl
ω_L	:	Larmorfrequenz

Abb. III-c zeigt das Endergebnis eines Fits. Aus der Frequenz der Modulation ergibt sich der g-Faktor. Die Relaxationszeit τ_R läßt sich aus der abklingenden Amplitude berechnen. Der Fit wurde in mehreren Schritten durchgeführt, da einige Fitparameter stark korreliert sind.

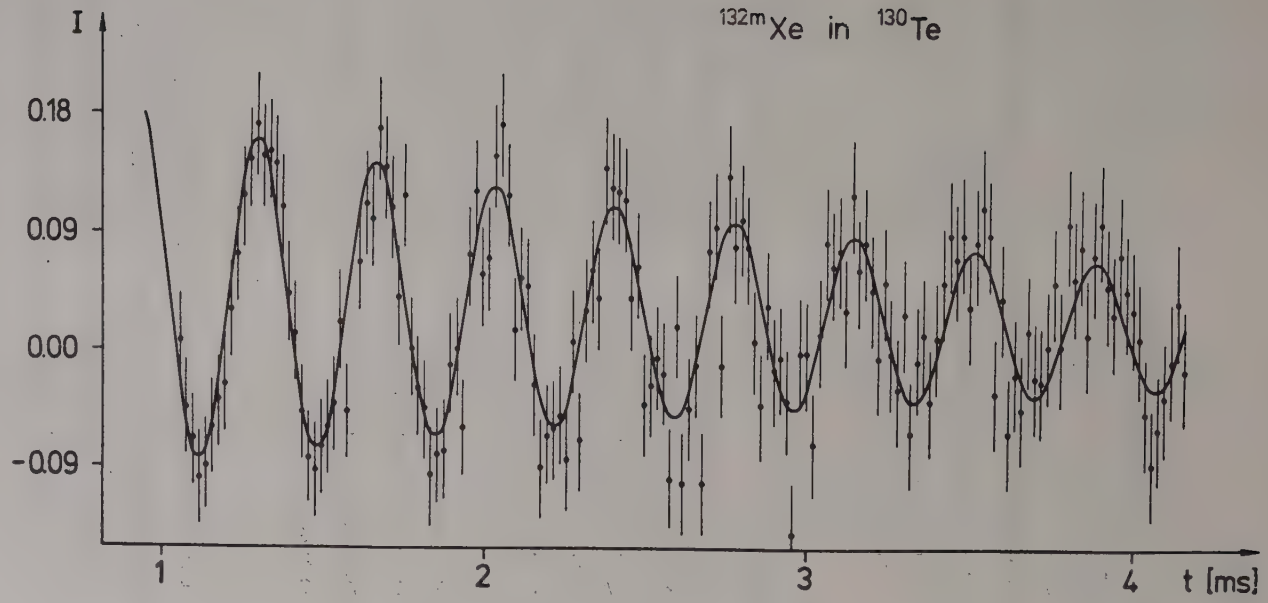


Abb. III-c: Spinrotationsspektrum des in Abb. III-b abgebildeten Zeitspektrums. Dieses Spektrum repräsentiert nur den Faktor $e^{-t/\tau_R} \cdot A_2 \{\frac{1}{4}+\frac{3}{4} \cos 2(\theta-\omega_L \cdot t)\}$ in Gl. (III-1).

III-2-1 Lebensdauer

Zunächst wurde die Lebensdauer τ_N gefittet, die von (BriH 67) mit $T_{1/2} = 8,4 \pm 0,8$ ms ($\tau_N = 12,1$ ms) angegeben worden war.

Um möglichst genaue Fits für τ_N zu bekommen, wurden die Zeitspektren über den gesamten Zeitbereich (2048 Kanäle) benutzt, wobei jeweils 4 Kanäle zusammengefaßt werden mußten, da das Programm nur 512 Kanäle verarbeiten konnte.

Mit $A_2 = 0,23^+$ und den freien Parametern I_o und I_1 wurde die Lebensdauer gefittet und in allen Fällen ein befriedigender Fit erreicht. Für die Zeiteichung brauchte kein systematischer Fehler angnommen zu werden, da sie allein durch die Fortschaltzeit des Multiscale-Einschubs (10 µs/Kanal) gegeben war. Diese Fortschaltzeit wurde von einem Schwingquarz des Vielkanalanalysators gesteuert und setzte sich zusammen aus der Registrierzeit (7,8 µs/Kanal) und der Totzeit (2,2 µs/Kanal), in der der Multiscale auf den nächsten Kanal vorschaltet. Da typische totale Zählraten nur etwa 5 kHz waren,brauchten keine Totzeiteffekte berücksichtigt zu werden; sie waren in den Spektren auch nicht zu erkennen.

$^+$ A_2 wurde nach einigen Probefits zu A_2=0,23 festgelegt. Wie sich später herausstellen wird, ist der optimale Wert von A_2= 0.19. Für die Bestimmung der Lebensdauer spielt diese Abweichung jedoch keine große Rolle, da A_2 und τ_N nur schwach voneinander abhängen.

Die Korrelation zwischen den Parametern τ_N, I_o und I_1 ist durch die folgende Matrix gegeben (alle anderen Parameter fest):

Tabelle III-A: Korrelationsmatrix für das Fitten der Lebensdauer.

	τ_N	I_o	I_1
τ_N	1.00	-0.70	0.97
I_o		1.00	-0.82
I_1			1.00

Die für die Lebensdauer in den verschiedenen Messungen erhaltenen Werte sind in Tabelle III-B zusammengefaßt, einschließlich der statistischen Fehler (in Klammern), die aus den Fits übernommen wurden.

Es ergibt sich als Mittelwert über alle Runs (mit gleichen Gewichten) die Lebensdauer des untersuchten Zustandes zu:

$$T_{1/2} = 7.96 \pm 0.03 \text{ ms}$$
$$\tau_N = 11.48 \pm 0.04 \text{ ms}$$

Der oben angegebene Fehler für $T_{1/2}$ und τ_N gibt die Streuung der aus den verschiedenen Runs erhaltenen Werte an. Dieser Fehler stimmt etwa mit dem $1/\sqrt{N}$-fachen (N = Anzahl der Messungen) der statistischen Fehler der Einzelfits überein.

Tabelle III-B: Fitergebnisse für die Lebensdauer ($T_{1/2}$) des $I^{\pi}=10^{+}$ Zustandes von ^{132m}Xe

Run	$T_{1/2}$ (µs) Detektor A ($\Theta=45^{o}$)		Run	$T_{1/2}$ (µs) Detektor B ($\Theta=135^{o}$)	
1145	8190	(215)	1146	7779	(208)
1147	8039	(183)	1148	7638	(147)
1149	7812	(225)	1150	8264	(189)
1151	8058	(183)	1152	7992	(166)
1157	7716	(172)	1158	7805	(207)
1209	8190	(205)	1210	8014	(160)
1211	8039	(218)	1212	7979	(149)
1213	7812	(210)	1214	7763	(141)
1215	8058	(218)	1216	7941	(154)
1217	7716	(205)	1218	7818	(141)
1219	7798	(218)	1220	8120	(154)
1221	8040	(256)	1222	8079	(186)
1223	7878	(229)	1224	7895	(273)
1225	7283	(178)	1226	8426	(241)
1227	8091	(240)	1228	7974	(235)
1229	7788	(254)	1230	7943	(241)
1231	8000	(251)	1232	7992	(208)
1233	7959	(236)	1234	8343	(217)
1237	7993	(216)	1238	7682	(172)
1243	7525	(273)	1244	8414	(296)
1245	8216	(249)	1246	8134	(185)
1247	7800	(205)	1248	7996	(192)
1435	7546	(315)	1436	8106	(265)
1437	8148	(197)			
1439	8093	(265)	1440	7834	(270)
			1442	7860	(198)
1443	7857	(178)	1444	7637	(296)
1445	8029	(175)	1446	8052	(144)
1447	8305	(160)	1448	8292	(132)
1449	8059	(257)	1450	8208	(235)

Der in dieser Arbeit ermittelte Wert für $T_{1/2}$ stellt eine Verbesserung des von (BriH 67) bestimmten Wertes dar (8.4±0.8 ms). Er liegt nur 0.4 ms unterhalb des von (BriH 67) angegebenen Wertes, jedoch noch innerhalb der von (BriH 67) bestimmten Fehlergrenze von 0.8 ms.

III-2-2 g-Faktor

Zum Fitten des g-Faktors wurde nur der erste Teil jedes Spektrums (512-Kanäle) benutzt, der die Intensitätsmodulation zeigte. Es wurden keine Kanäle zusammengefaßt.

Mit den Startwerten von $T_{1/2}$, I_o und I_1 aus den Fits über den ganzen Zeitbereich wurden jetzt die Parameter g, τ_R, A_2, θ und I_1 variiert (I_o und $T_{1/2}$ fest). Die Korrelationsmatrix eines Fits sah dann etwa so aus:

Tabelle III-C: Die Korrelationsmatrix für das Fitten des g-Faktors und der Relaxationszeit τ_R

	g	τ_R	A_2	θ	I_1
g	1.000	0.042	0.054	-0.903	0.019
τ_R		1.000	0.897	-0.058	0.260
A_2			1.000	-0.074	0.105
θ				1.000	-0.027
I_o					1.000

Wie aus der Korrelationsmatrix zu sehen ist, korreliert der g-Faktor nur mit dem Winkelparameter θ stark. Dagegen ist der Korrelationsfaktor zwischen dem g-Faktor und dem Anisotropieparameter A_2 sehr klein. Wie es sich später bei der Diskussion der Relaxationszeit τ_R herausstellt, hätte der Parameter A_2 fest gehalten werden müssen. Deswegen wurden alle Fits wiederholt. Es wurden jetzt nur die Parameter g, τ_R, und I_1 variiert (I_o, $T_{1/2}$ und A_2 fest). Die Korrelationsmatrix eines Fits sah dann so aus:

Tabelle III-D: Korrelationsmatrix für das Fitten des g-Faktors und der Relaxationszeit τ_R (A_2 = 0.19)

	g	τ_R	θ	I_1
g	1.000	-0.012	-0.901	0.019
τ_R		1.000	0.013	0.414
θ			1.000	-0.027
I_1				1.000

Mit A_2 = 0.19, 0.23 und 0.26 wurden Fits für den g-Faktor (und gleichzeitig für die Relaxationszeit τ_R) durchgeführt. Wie später diskutiert wird, ist der beste Wert für A_2 etwa 0.19.

Für die Bestimmung des g-Faktors ist dies jedoch nicht wesentlich, da die Ergebnisse für den g-Faktor für die drei verschiedenen

Werte von A_2 zeigen, daß g sehr schwach von A_2 abhängig ist ($\Delta g/g : \Delta A_2/A_2 = 0.002$). Die für den g-Faktor mit $A_2 = 0.19$ in verschiedenen Messungen erhaltenen Werte sind in Tabelle III-E zusammengefaßt.

Im Rahmen der auftretenden Meßfehler konnte eine eindeutige Änderung der Präzisionsfrequenz mit der Temperatur weder für die Messungen mit Detektor A noch für die mit Detektor B festgestellt werden. Bildet man die Mittelwerte der mit Detektor A bzw. B bei jeweils fester Temperatur gemessenen g-Faktoren, so zeigen auch diese keine eindeutige Änderung mit der Temperatur. Lediglich zeigen die mit Detektor A gemessenen g-Faktoren etwas kleinere Werte als die mit Detektor B.

Aus der Tabelle III-E ergibt sich der Mittelwert des g-Faktors zu:

$$g = 0.1958 \pm 0.0003$$

Das Vorzeichen von g wird später diskutiert. Es wurde in der Messung nicht ermittelt. Der angegebene Fehler wurde aus der Streuung der Meßwerte (mit gleichen Gewichten) erhalten. Die Streuung stimmt etwa mit dem $1/\sqrt{N}$-fachen der statistischen Fehler der Einzelfits überein (siehe Tabelle III-E).

Tabelle III-E: Der g-Faktor aus verschiedenen Messungen (mit dem Parameter A_2=0.19). In Klammern sind jeweils die statistischen Fehler angegeben, die aus den Fits übernommen wurden.

T(°K)	Detektor A (θ=45°)		Detektor B (θ=45°)	
	Run	g-Faktor	Run	g Faktor
699	1247	0.1911 (16)	1248	0.1959 (25)
703	1237	0.1939 (26)	1238	0.1980 (30)
710	1245	0.1931 (20)	1246	0.1970 (20)
722	1233	0.1982 (22)	1234	0.1963 (25)
726	1229	0.1977 (36)	1230	0.1947 (36)
726	1231	0.1944 (23)	1232	0.1985 (17)
729	1227	0.1965 (18)	1228	0.1973 (14)
732	1211	0.1952 (14)	1212	0.1991 (12)
738	1209	0.1961 (18)	1210	0.1956 (14)
743	1225	0.1953 (17)	1226	0.1931 (18)
765	1213	0.1956 (12)	1214	0.1960 (11)
778	1215	0.1949 (11)	1216	0.1979 (10)
796	1217	0.1944 (9)	1218	0.1958 (10)
808	1243	0.1931 (14)	1244	0.1981 (18)
815	1219	0.1950 (8)	1220	0.1980 (9)
834	1221	0.1948 (11)	1222	0.1956 (11)
849	1223	0.1944 (9)	1224	0.1964 (9)
931	1157	0.1964 (5)	1158	0.1966 (5)
995	1153	0.1954 (10)	1154	0.1946 (18)

Linear dazu wird der Fehler der Magnetfeldmessung addiert. Die Unsicherheit der Magnetfeldmessung wurde schon in II -4 diskutiert und beträgt etwa 0.10 G ($\Delta B/B$ = 1.2%). Die Größe des Paramagnetismus der Leitungselektronen (Knight-shift) ist nicht bekannt und wurde zusammen mit der diamagnetischen Abschirmung (chemical shift) vernachlässigt[+]. Damit erhält man für den g-Faktor den Wert:

$$g = 0.196 \pm 0.003$$

Dieser Wert stellt die erste Messung des g-Faktors des 10^+-Zustandes des ^{132}Xe dar und ist somit ein wichtiger Beitrag zur Erforschung der Struktur des ^{132}Xe.

III-2-3 Relaxationszeit

Zur Bestimmung der Relaxationszeit τ_R wurde wie bei der Bestimmung des g-Faktors nur der erste Teil jedes Spektrums verwendet. Es brauchten daher keine Kanäle zusammengefaßt zu werden. Die Bestimmung der Relaxationszeit τ_R ist kritischer als die Bestimmung des g-Faktors, da τ_R stärker mit den anderen Parametern korreliert ist (siehe Tab. III-D) als der g-Faktor. Am stärksten korreliert τ_R mit dem Anisotropieparameter A_2 (bei fester Lebensdauer τ_N, die ja aus dem Fit für die vollen Spektren bekannt ist).

[+] Die Knightshift wird in Kap. V zu $0.035\% < K < 0.50\%$ und die Chemicalshift zu etwa 0.50% (Kopf 58) abgeschätzt. Da beide Verschiebungen verschiedenes Vorzeichen besitzen, dürfte der Fehler bei der Vernachlässigung beider Korrekturen klein sein.

Der wirkliche Anisotropieparameter A_2 kann unter anderem von den folgenden Faktoren abhängen:

a) von der Einschußenergie über die erreichte Kernausrichtung
b) von der Anordnung des Detektors über die Raumwinkelmittelung
c) von der genauen Einstellung des Energiefensters, da mehrere Linien mit der gleichen Lebensdauer, aber verschiedenem A_2 im Spektrum auftreten.

Diese Unsicherheit wirkt sich auf den absoluten Wert der Relaxationszeit τ_R aus und weniger stark auch auf deren Temperaturabhängigkeit. A_2 sollte jedoch zumindest innerhalb eines Runs und für einen Detektor im wesentlichen fest sein.

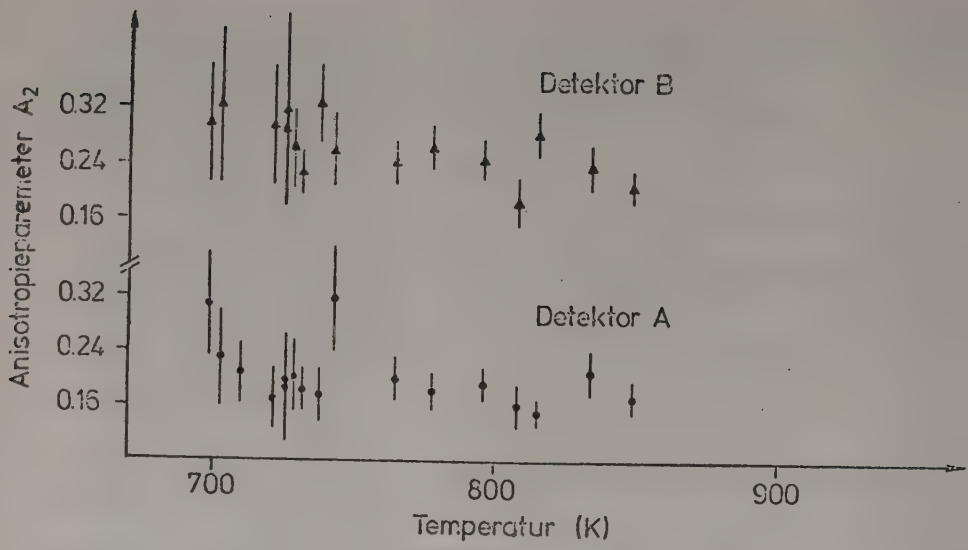
Betrachten wir zunächst den Run 12 genauer, weil dort die Statistik besonders gut ist und die Meßpunkte sich über einen grösseren Temperaturbereich erstrecken. Es wurden Fits mit g, τ_R, A_2 und dem Untergrund I_1 als freie Parameter gemacht. +

+ Die im Fit zunächst erhaltenen Werte für A_2 mußten noch aus folgendem Grund korrigiert werden: Bei der Fitprozedur war aus Versehen die Zeit t=0 etwa 120 µs vor dem Beampuls angesetzt worden. Das führte dazu, daß die Amplitude der Oszillationen auf einen Zeitpunkt zurückextrapoliert wurde, der 120 µs vor dem wahren Zeitnullpunkt lag, d.h. daß der Fit einen zu großen Wert für A_2 lieferte. Die Korrektur liegt für die Werte von Run 12 etwa zwischen 15% und 0%, je nach Länge der Relaxationszeit. Im folgenden werden immer die auf diese Weise korrigierten Werte benutzt. Bei der auf der Seite 34 beschriebenen Extrapolation auf das "wahre" A_2 wird diese Korrektur berücksichtigt.

Tabelle III-F: Anisotropieparameter A_2 und Relaxationszeit τ_R für RUN 12 für Detektor A (θ=45°) und B (θ=135°). Die in den Klammern angegebenen Werte sind jeweils die statistischen Fehler aus den Fits.

T(°K)	Detektor A (θ=45°)			Detektor B (θ=135°)		
	RUN	A_2	τ_R (ms)	RUN	A_2	τ_R (ms)
699	1247	0.312 (77)	0.93 (16)	1248	0.295 (86)	0.91 (19)
703	1237	0.231 (70)	0.99 (22)	1238	0.322 (111)	0.78 (17)
710	1245	0.190 (43)	1.42 (30)	1246	0.163 (37)	1.73 (42)
722	1233	0.170 (45)	1.46 (36)	1234	0.290 (83)	1.02 (22)
726	1229	0.188 (82)	1.16 (40)	1230	0.317 (142)	0.85 (25)
726	1231	0.199 (36)	1.30 (32)	1232	0.286 (59)	1.19 (21)
729	1227	0.202 (51)	1.60 (22)	1228	0.260 (58)	1.56 (20)
732	1211	0.184 (32)	1.66 (29)	1212	0.226 (32)	1.45 (20)
738	1209	0.176 (40)	1.40 (28)	1210	0.323 (56)	1.01 (13)
743	1225	0.316 (76)	1.09 (28)	1226	0.255 (53)	1.30 (25)
765	1213	0.201 (32)	1.60 (25)	1214	0.241 (32)	1.47 (19)
778	1215	0.182 (26)	1.97 (31)	1216	0.261 (33)	1.56 (20)
796	1217	0.192 (24)	2.00 (29)	1218	0.244 (30)	1.60 (20)
808	1243	0.162 (31)	2.58 (66)	1244	0.184 (38)	2.05 (51)
815	1219	0.149 (17)	3.37 (65)	1220	0.281 (31)	1.59 (18)
834	1221	0.209 (31)	1.98 (33)	1222	0.234 (32)	1.77 (27)
849	1223	0.172 (23)	2.60 (46)	1224	0.204 (23)	2.36 (34)

Die A_2-Werte beider Detektoren sind in der Tabelle III-F zusammengefaßt und in Abb. III-c über der Temperatur und der im Fit erhaltenen Relaxationszeit aufgetragen. Bei der Mittelung ergibt sich für den Detektor A ein A_2 von 0.20±0.01 und für den Detektor B ein A_2 von 0.26±0.01 (Mittelung mit gleichen Gewichten). Wie



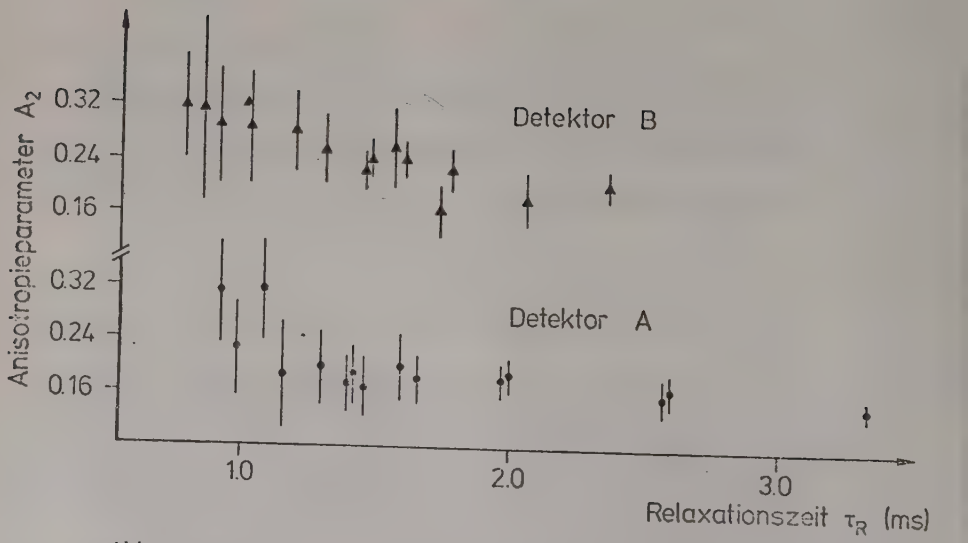


Abb. III-C: Anisotropieparameter A_2 in Abhängigkeit von der Temperatur und der Relaxationszeit für den Detektor A und den Detektor B.
(Messungen von Run 12)

später diskutiert werden wird, ergibt eine solche Mittelung jedoch im vorliegenden Fall keine gute Schätzung für A_2.

Wenn nämlich die Fitergebnisse für A_2 und τ_R statistisch unabhängig aus den verschiedenen Messungen hervorgingen, dann sollte sich keine systematische Abhängigkeit der Bestwerte von A_2 von denen für τ_R zeigen. Das heißt: A_2 sollte immer denselben Wert haben. Das ist aber offenbar nicht erfüllt, weder für Detektor A noch für Detektor B (siehe Abbildung III-c). Es besteht ein systematischer Zusammenhang in dem Sinne, daß bei größeren Relaxationszeiten kleinere A_2-Werte beobachtet werden. Damit wird die Wahl des "richtigen A_2-Wertes" schwieriger.

Die Ursache für diesen systematischen Zusammenhang ist nicht klar. Wir nehmen an, daß die Spektren mit langen Relaxationszeiten einen besseren Wert für A_2 liefern als die mit kurzen, und benutzen diesen Wert (A_2=0.19) im folgenden als festen Parameter.

Fixiert man nun den gleichen A_2-Wert für beide Detektoren, so ergibt sich im Detektor B systematisch eine etwas größere Relaxationszeit als im Detektor A. Daher wurde der A_2-Wert für den Detektor B etwas größer gewählt und zwar so, daß in gleich vielen Fällen die Relaxationszeit in Detektor B größer war als in Detektor A und umgekehrt. Auf diese Weise ergab sich für Detektor B der Wert A_2 = 0.205. Die kleine Diskrepanz zwischen den beiden A_2-Werten -0.19 für Detektor A und 0.205 für Detektor B - dürfte innerhalb der experimentell möglichen Unterschiede, z.B. durch verschiedene Raum-

winkel, liegen. Mit diesen beiden A_2-Werten sind nun die Relaxationszeiten τ_R als Funktionen der Temperatur in der Abb. III-d aufgetragen, wobei nochmal zwischen Detektor A und B unterschieden ist.

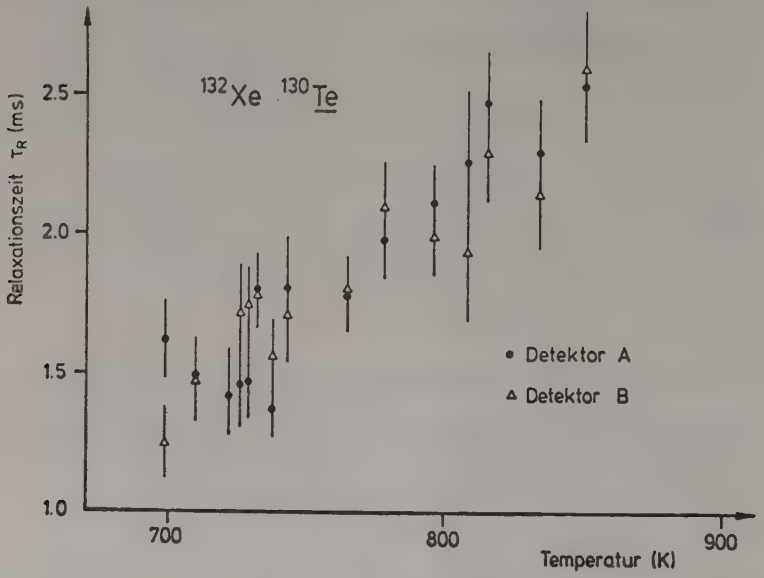


Abb. III-d: Relaxationszeit τ_R als Funktion der Temperatur für Detektor A (A_2 = 0.19) und Detektor B (A_2 = 0.205) (Messungen von Run 12)

Nachzutragen bleibt die Begründung für die Annahme, daß A_2 von der Relaxationszeit - und das heißt hier von der Temperatur - nicht abhängen soll. Der in der Abb. III-c offenbar werdende Trend ist umgekehrt wie in festen Metallen, wo ein Anwachsen von A_2 mit steigender Temperatur unterhalb des Schmelzpunktes beobachtet wurde (BerE 74). In flüssigen Systemen wurde eine Abhängigkeit von A_2 von der Temperatur bisher nicht beobachtet. Es ist aber vorstellbar, daß der beobachtete Zusammenhang dadurch hervorgerufen ist, daß zwischen diesen beiden Parametern rechnerisch beim Fitten eine sehr starke Korrelation besteht(Tab.III-c:Das Element der Korrelationsmatrix zwischen A_2 und τ_R beträgt -0.9). Wir gehen davon aus, daß ein solcher Zusammenheng physikalisch nicht existiert und haben deshalb einen konstanten Wert für A_2 angenommen.

Die Absolutwerte der Relaxationszeiten bleiben bei dem beschriebenen Verfahren noch offen. Es wird angenommen, daß das Wertepaar A_2=0.19 und A_2=0.205 für Detekor A bzw. B eine beste Schätzung für den voraussichtlichen wahren A_2-Wert darstellt. Die Unsicherheit ist jedoch relativ groß, wir schätzen sie auf ±0.04. Das bedeutet, daß die Relaxationszeit bei 700°K gleich 1.44±0.20 ms und bei 850°K gleich 2.56±0.46 ms sind.

Die Unsicherheit der absoluten Werte von A_2 verursacht eine Unsicherheit der absoluten Werte der Relaxationszeiten von etwa 15%. Der Verlauf der Temperaturabhängigkeit der Relaxationszeiten wird dadurch kaum beeinflußt, es ergibt sich lediglich eine Parallelverschiebung.

Anschließend wurde die Relaxationszeit von RUN 11 und RUN 14 gefittet. Diese liefern Meßpunkte bis 1053°K. Beim Fit wurde jeweils ein fester A_2-Wert benutzt und anschließend wurden die erhaltenen Temperaturabhängigkeiten der Relaxationszeiten so verschoben, daß sie im Überlappungsbereich mit derjenigen von RUN 12 übereinstimmten. Damit haben wir die Temperaturabhängigkeit der Relaxationszeit im Temperaturbereich von 700°K bis 1053°K gewonnen (Abb. III-e).

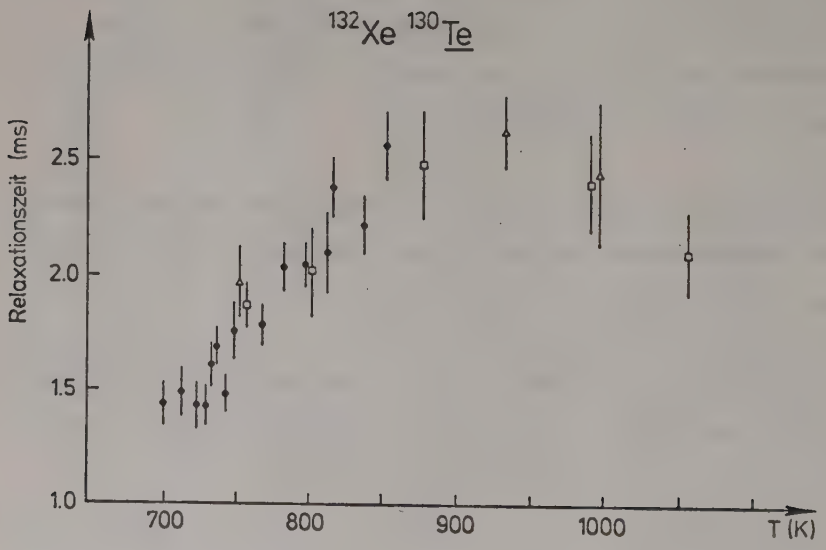


Abb. III-e: Relaxationszeit als Funktion der Temperatur
△ aus RUN 11, ● aus RUN 12, □ aus RUN 14.

Die Relaxationszeit nimmt zunächst mit der Temperatur bis etwa 900°K zu, darüber hinaus (3 Meßpunkte) nimmt sie mit der Temperatur ab. Unterhalb des Schmelzpunktes (725°K) wurde beim erstmaligen Aufwärmen des Tellurtargets keine Modulation der Winkelverteilung beobachtet; wegen der niedrigen Symmetrie des festen Te-Gitters (hexagonal) wurde die Ausrichtung, die bei der Kernreaktion erteilt wurde, innerhalb von Zeiten zerstört, die wahrscheinlich kleiner als 1 μs waren. Wurde die Probe aber aus der flüssigen Phase unter dem Schmelzpunkt abgekühlt, so konnte die Anisotropie beobachtet werden. Dies war auf Unterkühlung von flüssigem Tellur zurückführen.

IV Diskussion

IV-1 Magnetisches Moment

Das Niveauschema von ^{132}Xe wurde bereits von Kerek et al. (KerL 71) untersucht. Er folgert, daß der uns interessierende Zustand ($I^{\pi} = 10^{+}$, 2575 keV) durch eine nahezu reine Quasiteilchenkonfiguration $(\nu h^2_{11/2})10^{+}$ gebildet wird. Mit dem spin I = 10 wird das magnetische Moment des Zustandes durch die vorliegende Messung des g-Faktors bestimmt zu:

$$\mu = (-1.96 \pm 0.03)\ \mu_N$$

Das magnetische Moment eines $h_{11/2}$-Neutrons ergibt sich also zu

$$(\mu)_{h_{11/2}} = (-1.07 \pm 0.02)\ \mu_N$$

Da es sich hier um eine $h_{11/2}$-Neutronkonfiguration handelt, muß nach dem Schalen-Modell das Vorzeichen des Momentes - und damit des g-Faktors - negativ sein. Dieser Wert kommt den bisher in benachbarten Isotopen (Cd und Te) für $h_{11/2}$-Neutronen gemessenen Momenten nahe (siehe Tabelle IV-A). Alle Werte liegen im Bereich von (-1.0±0.1) μ_N. Man kann annehmen, daß die Abweichung des vorliegenden Wertes vom Schmidt-Wert (-1.91 μ_N), genauso wie es bei den anderen bisher gemessenen Momenten bereits gelungen ist (Rie 73, Sil 73), durch Core-Polarisation (AriH 54, Stop 54) und Paar-Korrelation (KisS 60, FreK 61) zu erklären ist.

Anmerkung zur Lebensdauer: Die Lebensdauer des Zustandes wurde von (KerL 71) schon analysiert. An deren theoretischer Interpretation ändert unser verbessertes Meßergebnis nichts.

Tab. IV-A: Magnetische Momente des $h^{11/2}$-Neutrons in den Cd-, Te- und Xe-Isotopen

Isotope	Zustände	$\mu(\frac{11}{2}^-)_{exp}/\mu_N$ [+]	Literatur
^{109}Cd	$\frac{11}{2}^-$	-1.09	BloF 71
^{111}Cd	$\frac{11}{2}^-$	-1.10	LauM 69
^{113}Cd	$\frac{11}{2}^-$	-1.09	ByrM 64
^{115}Cd	$\frac{11}{2}^-$	-1.04	McDN 63
^{123}Te	$\frac{11}{2}^-$	-1.00(5)	SilC 73
^{125}Te	$\frac{11}{2}^-$	-0.93(5)	SilC 72
^{127}Te	$\frac{11}{2}^-$	-0.91(5)	SilC 73
^{129}Te	$\frac{11}{2}^-$	-1.15(5)	SilC 73
^{132}Xe	10^+	-1.07(2)	diese Arbeit

[+] Falls der Fehler nicht angegeben ist, ist er kleiner als 0.01 μ_N (μ_N: Kernmagneton).

IV-2 Spin-Gitter-Relaxation

Die Spin-Gitter Relaxation wird durch die Wechselwirkung zwischen den Kernmomenten und den zeitlich veränderlichen Feldern am Kernort hervorgerufen. Die magnetische Relaxation rührt von der Wechselwirkung des magnetischen Kerndipolmoments und des fluktuierenden Magnetfeldes am Kernort her. Durch diese Wechselwirkung werden dann Übergänge zwischen den Kernzeemanzuständen induziert. Falls die induzierten Übergänge von der Wechselwirkung zwischen Kernquadrupolmoment und fluktuierendem elektrischen Feldgradienten (EFG) am Kernort hervorgerufen werden, handelt es sich um eine Quadrupolrelaxation. Letzteres kann nur dann der Fall sein, wenn der Kernspin $I \geq 1$, da sonst das Kernquadrupolmoment Null ist.

Im allgemeinen setzt sich die gesamte Relaxationsrate $R=1/\tau_R$ aus der magnetischen Relaxationsrate $R_M=1/\tau_M$ und der Quadrupolrelaxationsrate $R_Q=1/\tau_Q$ zusammen:

$$\frac{1}{\tau_R} = \frac{1}{\tau_M} + \frac{1}{\tau_Q} \quad ; \quad R = R_M + R_Q \qquad (4\text{-}1)$$

τ_R : Relaxationszeit

R : Relaxationsrate.

Die Trennung der magnetischen und der Quadrupolrelaxationsrate ist in vielen Fällen sehr schwierig. Sie kann im Prinzip z.B. aus der Temperaturabhängigkeit der Relaxationsrate erschlossen werden, wenn R_M und R_Q verschiedene Temperaturabhängigkeiten haben.

IV-2-1 Magnetische Relaxation

Im Falle der magnetischen Wechselwirkung ist die magnetische Relaxationsrate nach Abragam und Pound (AbrP 53; WagP 71) gegeben durch:

$$R_M = \frac{k(k+1)}{3} \left(\frac{g\mu_N}{\hbar}\right)^2 \overline{b^2}\ \tau_e \qquad (4\text{-}2)$$

k: tensorieller Ausrichtungsgrad

g: g-Faktor

μ_N: Kernmagneton

$\overline{b^2}$: quadratisch gemittelte Schwankung des Magnetfeldes am Kernort

τ_e: Korrelationszeit des Magnetfeldes am Kernort

In normalen flüssigen Metallen wird die magnetische Relaxation hauptsächlich durch die Wechselwirkung zwischen den Kerndipolmomenten und den fluktuierenden Feldern der Leitungselektronen hervorgerufen. Die Fluktuation wird durch eine Korrelationszeit τ_e charakterisiert. Die Temperaturabhängigkeit der magnetischen Relaxationsrate kann durch die Korringa-Relation (Korr 50) beschrieben werden:

$$R_M(T) = k(k+1)\ \frac{2\pi k_B}{\hbar}\ \left(\frac{\gamma_N}{\gamma_e}\right)^2 k(\alpha)\ K^2\ T \qquad (4\text{-}3)$$

k_B: Boltzmann-Konstante

γ_N bzw. γ_e: Gyromagnetisches Verhältnis des Kernes bzw. des Elektrons

k(α): Korrekturfaktor der Elektron-Elektron Wechselwirkung von der Größenordnung 1 (Pin 55)

K: Knight-Shift-Konstante

Die Knight-Shift-Konstante wird im allgemeinen durch den Beitrag der s-Leitungselektronen dominiert ("Kontaktwechselwirkung"). Für die mit NMR an stabilen Isotopen gemessenen Relaxationszeiten gilt k=1, während für die mit gestörten γ-Winkelkorrrelationen gemessenen Relaxationszeiten k nur die geradzahligen Werte 2,4,6,... usw. annimmt. Für diese Arbeit gilt k=2, weil die gemessenen Spinrotationsspektren sehr gut mit dem Term k=2 angepaßt werden können, während der Beitrag des Terms k=4 unterhalb der Meßgenauigkeit liegt.+

IV-2-2 Quadrupolrelaxation

In der Literatur werden zwei Prozesse für Quadrupolrelaxation in flüssigen Metallen diskutiert:

a: Beim ersten handelt es sich um Wechselwirkung der Kerns mit translatorischen Bewegungen der nicht-s-Leitungselektronen (Mitc 57). Die Relaxation wird durch Streuprozesse der Leitungselektronen an der Fermikante induziert, analog zu den erwähnten Korringa-Prozessen für die magnetische Relaxation.

+Nach der Tabelle von Yamazaki (Yam67) ist A_4 um etwa 30% kleiner als A_2. Wesentlich zur Beobachtung des Anisotropieeffektes beim Spiro-Verfahren ist jedoch das Verhältnis der Strahlimpulsbreite ΔT zur Modulationsperiode T_M. Für k=2 ist $\Delta T/T_M = 0.375$, für k=4 dagegen 0.75. Dies führt zur stärkeren Auslöschung der Anisotropie (vergleiche Seite 6), so daß die k=4-Beiträge vernachlässigbar sind.

Im Vergleich zur gemessenen Quadrupolrelaxationsrate in flüssigen Metallen ist die von Mitchell theoretisch berechnete Rate sehr gering (Obat 63, WarC69). Dies sollte auch für flüssiges Tellur zutreffen, denn wenn auch der p-Charakter der Leitungselektronen stärker ist im Vergleich zu normalen Metallen, so ist doch die Anzahl der Leitungselektronen wesentlich niedriger. In der weiteren Diskussion wird dieser Prozeß vernachlässigt.

b: Beim zweiten handelt es sich um Wechselwirkung des Kerns mit der thermischen Bewegung der Ionen, die einen zeitlich veränderlichen EFG am Ort des Sondenkernes erzeugt. Nach Abragam und Pound (AbrP 53, WagP 71) ist

$$R_Q = \frac{3}{80}\, k(k+1)\, \frac{4I(I+1)-k(k+1)-1}{I^2(2I-1)^2}\, \left(\frac{eQ}{\hbar}\right)^2\, \overline{q^2}\, \tau_i \qquad (4\text{-}4)$$

I: Kernspin

Q: Kernquadrupolmoment

$\overline{q^2}$: mittlerer quadratischer EFG am Kernort

τ_i: Korrelationszeit des EFG am Ort des Sondenkernes

Die Temperaturabhängigkeit der Quadrupolrelaxationsrate in flüssigen Metallen wird nach (BorR 67, RosG 67) hauptsächlich von der Temperaturabhängigkeit der Selbstdiffusionsrate D(T) und der Dichte $\rho(T)$ bestimmt:

$$R_Q \sim \rho(T).D^{-1}(T) \qquad (4\text{-}5)$$

Eine detailliertere Theorie über die von den Diffusionsprozessen verursachten Quadrupolrelaxationen (Sholl 67) bringt noch einen zusätzlichen temperaturabhängigen Faktor zur Gl. (4-5):

$$R_Q \sim \rho . D^{-1}.(I_1+2\pi\rho\, I_2) \qquad (4\text{-}6)$$

I_1 und I_2 sind Integrale, welche die Zwei- und Dreiteilchen-Korrelationsfunktion enthalten. Wenn diese Korrelationsfunktionen temperaturabhängig sind, wird der zusätzliche Faktor $(I_1+2\pi\rho I_2)$ temperaturabhängig. Eine besondere Schwierigkeit der Gl. (4-6) liegt darin, daß die beiden Integrale vergleichbare Beiträge liefern, aber mit verschiedenen Vorzeichen, so daß sie mit sehr großer Genauigkeit ermittelt werden müssen, um eine genauere Voraussage für R_Q zu erhalten.

In neueren Theorien über Quadrupolrelaxation (GabS 74, Shol74, Warr 74, Schi 76) wird R_Q durch den Grenzwert $\omega \to 0$ des dynamischen Strukturfaktors $S(k,\omega)$ ausgedrückt. Das Ergebnis von

(GabS 74) als Spezialfall der allgemeinen Ausdrücke in (Shol 74) hat folgende Form

$$R_Q \sim \rho \int_{-\infty}^{\infty} d^3k \, |\tilde{q}(k)|^2 \quad S(k,\omega=0) \qquad (4\text{-}7)$$

$\tilde{q}(k)$ ist die Fouriertransformierte von $\tilde{q}(r)=q(r)\cdot\alpha(r)$. $q(r)$ ist der EFG, den ein Nachbarion im Abstand r erzeugt; $\alpha(r)$ ist eine Abschneidefunktion: $\alpha(r)=0$ für $r < r_o$ bzw. $\alpha(r)=1$ für $r \geq r_o$. Letzteres bezieht sich auf die Tatsache, daß die Ionen ein gewisses Volumen haben. Mit den Näherungen

$S(k,\omega) = S_s(k,\omega)\, a(k)$ (Vine 58) und

$S_s(k,\omega) = 2Dk^2\left[\pi(\omega^2+4D^2k^4)\right]^{-1}$

$S_s(k,\omega)$: Selbstanteil von $S(k,\omega)$

$a(k)$: Strukturfunktion

lautet jetzt die Gl. (4-7) im Grenzfall $\omega \to 0$:

$$R_Q \sim \frac{\rho \cdot D^{-1}}{2\pi} \int_{\infty}^{\infty} d^3k \; k^{-2} |\tilde{q}(k)|^2 \; a(k) \qquad (4\text{-}8)$$

Im Vergleich zu Gl. (4-5) wird die Temperaturabhängigkeit der Quadrupolrelaxationsrate möglicherweise auch von einer Temperaturabhängigkeit des EFG am Kernort sowie der Zwei- bzw. Dreiteilchen-Korrelationsfunktion bestimmt.

+Warren (Warr 74) und Sholl (Shol 74) benutzen $\alpha(r) = g(r)$ bzw. $g^{1/2}(r)$, wobei $g(r)$ die radiale Paarverteilungfunktion ist.

IV-3 Größe der Relaxationsrate

Nach Gl. (4-1) ist es einfacher, an Stelle der Relaxationszeit die Relaxationsrate R zu betrachten. Abb. (IV-a) zeigt die gemessene Relaxationsrate als Funktion der Temperatur. Die Relaxationsrate nimmt zunächst mit der Temperatur ab, von etwa 700/s beim Schmelzpunkt bis etwa 360/s bei 900°K, bei höheren Temperaturen steigt sie wieder an.

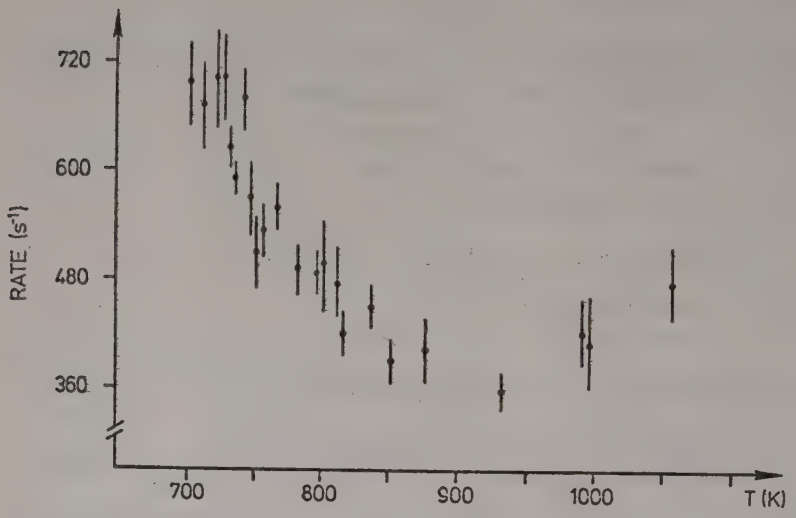


Abb. IV-a: Relaxationsrate als Funktion der Temperatur

Es ist nicht möglich, die absolute Größe der Relaxationsrate aus der Gleichung (4-2) und (4-3) genau zu berechnen, da viele der Parameter, z.B. $\overline{b^2}$, Q, $\overline{q^2}$, nicht bekannt sind. Die relative Stärke der magnetischen Rate zur Quadrupolrate kann dagegen unter Benutzung von Relaxationsdaten von XeXe und TeTe folgendermaßen abgeschätzt werden.

IV-3-1 Relative Größe magnetischer und quadrupolarer Beiträge zur Gesamtrelaxation

Die steile Abnahme der Rate mit der Temperatur oberhalb des Schmelzpunktes deutet auf einen Temperaturverlauf der Quadrupolrate $R_Q(T)$ hin, der in vielen normalen Flüssigkeiten beobachtet wurde. Dagegen weist die Zunahme der Relaxationsrate oberhalb 900°K auf die Vermutung hin, daß die magnetische Relaxationsrate in diesem Temperaturbereich dominant ist.

Ausgehend von Gleichung (4-2) könnte man die magnetische Rate im XeTe-System abschätzen, wenn ein experimentelles Ergebnis über ein anderes Xe-Isotop als Sondenkern in flüssigem Tellur vorliegen würde. Eine solche Messung existiert bis jetzt nicht, jedoch liegen Hyperfeinwechselwirkungs-Messungen von Xenon in flüssigem Xenon und Tellur in flüssigem Tellur (XeXe- bzw. TeTe-System) vor.

a) Die Hyperfeinwechselwirkung in flüssigem Tellur (^{125}TeTe) wurde von Warren (Warr 72) mit NMR-Methode untersucht. Es handelt sich hier um eine rein magnetische Relaxation, da das Isotop ^{125}Te den Kernspin I = 1/2 hat. Die gemessene magnetische Rate $R_M(^{125}\text{TeTe})$ beträgt etwa $0.5 \cdot 10^4$/s bei 700°K. Unter der Annahme, daß die effektive Stärke des Hyperfeinfeldes und die Korrelationszeit τ_e für TeTe und XeTe gleich sind, d.h.

$$\overline{(b^2\tau_e)}_{^{125}\text{TeTe}} = \overline{(b^2\tau_e)}_{^{132}\text{XeTe}} \qquad (4\text{-}9)$$

bekommt man nach Gl. (4-2):

$$(R_M)_{^{132}XeTe} = 3\left(\frac{g_{^{132}Xe}}{g_{^{125}Te}}\right)^2 \cdot (R_M)_{^{125}TeTe} \qquad (4\text{-}10)$$

wobei der Faktor 3 dem unterschiedlichen tensoriellen Ausrichtungsgrad k=2 im XeTe- gegenüber k=1 im TeTe-System (bei SPIRO - und NMR-Methode; siehe Seite 44) entspricht. So ergibt sich für die magnetische Rate $(R_M)(^{132}XeTe)$ ein Wert von etwa 250/s.

Dazu folgende Bemerkung zur Annahme (4-9):

Das effektive mittlere quadratische Magnetfeld am beobachteten Kernort $\overline{b^2}$ wird durch die Wechselwirkung zwischen den Valenzelektronen des Sondenatoms und den Leitungselektronen der Wirtsatome bestimmt. Es hängt davon ab, wie stark die Valenzelektronen des Sondenatoms von den Leitungselektronen der Wirtsatome polarisiert werden. Diese Polarisation ist für die stark gebundenen Elektronen eines Xe-Edelgasatoms viel schwächer als für die Elektronen eines Telluratoms. Unter diesem Gesichtspunkt ist die tatsächliche magnetische Rate im $^{132}XeTe$-System vermutlich kleiner als der oben berechnete Wert; er gilt höchstens als die obere Grenze für den Beitrag der magnetischen Rate zur Gesamtrate.

b) Beim zweiten Fall handelt es sich um die Relaxationsprozesse vom ^{131}Xe-Isotop (I=3/2) in flüssigem Xenon (WarN 66). Die beobachtete Relaxationsrate konnte gut mit der Quadrupolrate erklärt werden.

Als Schlußfolgerung ergibt sich die Vermutung, daß die magnetische Relaxationsrate im ^{132}XeTe - System im Temperaturbereich kurz oberhalb des Schmelzpunktes von Tellur wesentlich kleiner als die Quadrupolrate ist.

IV-3-2 Theoretische Abschätzungen für R_M und R_Q

Betrachten wir nun noch einmal die Gleichungen (4-2) und (4-4). Sie gelten unter folgenden Voraussetzungen:

a) Das Magnetfeld b und der EFG q am Xe-Kernort sind isotrop und willkürlich fluktuierend.
b) Das Produkt der Larmorfrequenz ω_L mit der Korrelationszeit $\tau_{e,i}$ ist sehr klein: $\omega_L \cdot \tau_{e,i} << 1$
c) Die Beobachtungszeit t ist viel größer als die Korrelationszeit $\tau_{e,i}$.
d) Die Korrelationsfunktionen für das Hyperfeinfeld können durch exponentielle Funktionen beschrieben werden:

$$\overline{b(t) \cdot b(0)} = \overline{b^2} e^{-t/\tau_e} \quad \text{bzw.} \quad \overline{q(t) \cdot q(0)} = \overline{q^2} e^{-t/\tau_i}$$

Während die ersten drei Voraussetzungen hier mit Sicherheit erfüllt werden, müssen wir die letzte Voraussetzung als eine Annahme auffassen, da keine hinreichend genaue Information über die Dynamik und Struktur des flüssigen XeTe - Systems vorliegt.

Wir betrachten zunächst die Gleichung (4-2) für die magnetische Rate. Die Korrelationszeit τ_e für das XeTe - System wird von der Korrelationszeit der Leitungselektronen des flüssigen Tellurs bestimmt. Hier bedeutet die Korrelationszeit τ_e die Zeit, die ein Leitungselektron des Tellurs benötigt, um die Strecke von einem Gitterabstand a mit der Fermigeschwindigkeit v_F zurückzulegen (Warr 72), d.h. in diesem Fall: Die Dauer der Wechselwirkung zwischen einem Tellur-Leitungselektron an der Fermi-Kante und einem Valenzelektron des Xe-Atoms. Für ein quasifreies Elektron gilt (Warr 71):

$$\tau_e = a/v_F \simeq \hbar N(E_F) \qquad (4\text{-}11)$$

Am Schmelzpunkt des Tellurs nehmen wir einen Wert für die Zustandsdichte an der Fermikante $N(E_F) = 1.3 \cdot 10^{11}$ erg/Atom (Warr 72) an. Damit ergibt sich die Korrelationszeit τ_e zu:

$$\tau_e = 1.4 \quad 10^{-16} \text{ s} \qquad (4\text{-}12)$$

Für die Berechnung der absoluten Größe der magnetischen Rate bleibt jetzt nur noch das effektive mittlere quadratische Magnetfeld am Xe-Kernort $\overline{b^2}$ als unbekannter Parameter übrig.

Weiterhin betrachten wir Gleichung (4-4) für die Quadrupolrate. In diesem Fall haben wir drei unbekannte Parameter, nämlich das Quadrupolmoment Q, die Korrelationszeit τ_i und den mittleren quadratischen EFG $\overline{q^2}$.

Experimentelle Werte für Quadrupolmomente Q für $(\nu h_{11/2})^n$-Konfigurationen im Xenon existieren bisher nicht, so daß eine Abschätzung des Quadrupolmoments für ^{132}Xe sehr schwierig ist. Lediglich liegen Werte für Quadrupolmomente in benachbarten Atomen vor. So zeigen z.B. die Momente der $\nu d_{3/2}$-Zustände, die nahe N=75 etwa 0,5b sind, eine Zunahme von etwa $\Delta Q/\Delta N = +0.05$b (Shi 75). Von vergleichbarer Größe ist die Zunahme der Momente der $\pi d_{5/2}$- und $\pi g_{7/2}$-Zustände im Jod und Cs. Die Momente der $(\nu h_{11/2})$- Zustände in Sn-Isotopen variieren von -0.1b bis -0.5b (DimR 75), und das Moment für ^{131}Xe-Grundzustand beträgt Q = -0.12b. Damit wir die Quadrupolrate im ^{132}Xe<u>Te</u> - System überhaupt berechnen können, nehmen wir willkürlich einen Wert $|Q| = 0.2$b für das Quadrupolmoment des $(\nu h_{11/2})^2$-Zustandes im ^{132}Xe. Die Unsicherheit des Momentes dürfte bei einem Faktor vier in beiden Richtungen liegen.

Die Korrelationszeit τ_i für das Xe<u>Te</u> - System wird hauptsächlich von der Korrelationszeit der Telluratome bzw. -ionen bestimmt. Die Korrektur dürfte klein sein, da die relative Bewegung zwischen einem bestimmten Tellurnachbar-Ion und dem Xe-Atom durch die Wechselwirkung zwischen diesem Tellurion und allen anderen Nachbarionen bestimmt wird. Sie wird wiederum vorwiegend von

der Bewegung der Tellur-Ionen bestimmt, da die Konzentration der Xe-Verunreinigung in dem XeTe - System sehr gering ist (< 1 ppm). Axmann et al. (AxmG 68) hatten τ_i für reines flüssiges Tellur bei 743° K durch inelastische Neutronen-Streumessungen bestimmt:

$$\tau_i \simeq 6 \cdot 10^{-12} \text{ s} \qquad (4\text{-}13)$$

Damit bleibt hier der effektive mittlere quadratische EFG $\overline{q^2}$ als unbekannter Parameter übrig. Er wird zusammen mit $\overline{b^2}$ im nächsten Kapitel diskutiert.

IV-3-3 Theoretische Abschätzung der Hyperfeinfelder von Xe in flüssigem Tellur: quasi molekulare Näherung

Das Xenonatom hat den Grundzustand mit der Konfiguration $5s^2 6p^6$ ($^1S_0$). Im flüssigen Tellur kann die kugelsymmetrische Konfiguration des Xe-Atoms durch einen Stoßprozeß bzw. eine Bindung zwischen dem Xe-Atom und den Tellurnachbaratomen gestört werden. Im Sinne der Störungstheorie werden hierdurch die Elektronen des Xe-Atoms angeregt und ein Hyperfeinfeld am Xe-Kernort erzeugt. Der niedrigste angeregte Zustand hat die Konfiguration $5s^2 5p^5 6s^1$ und liegt 8,5 eV über dem Grundzustand.

Für das Hyperfeinfeld im XeTe - System machen wir uns nun fol-

gendes Bild: Der EFG am Xe-Kernort wird hauptsächlich vom 5p-Loch erzeugt (q_{5p}), und das magnetische Feld am Xe-Kernort wird hauptsächlich vom 6s-Elektron hervorgerufen (b_{6s}). Betrachten wir (f_{6s}) als die Beimischungsamplitude des angeregten Zustandes $5p^2 5p^5 6s$, so ist die Besetzungswahrscheinlichkeit dieses angeregten Zustandes gleich dem Beimischungskoeffizienten $(f_{6s})^2$. Der effektive EFG q und das effektive Magnetfeld b am Xe-Kernort sind dann:

$$q = q_{5p} \cdot (f_{6s})^2 \; ; \quad b = b_{6s} \cdot (f_{6s})^2 \qquad (4\text{-}14)$$

Beiträge von anderen angeregten Zuständen zum EFG- bzw. zum Magnetfeld werden hier vernachlässigt, da deren Beimischungsamplituden f_n viel kleiner als (f_{6s}) sein werden. Der Beimischungskoeffizient $(f_{6s})^2$ ergibt sich mit Störungstheorie zweiter Ordnung als (Anhang VI-1)

$$(f_{6s})^2 = \frac{\varphi}{\Delta E} \qquad (4\text{-}15)$$

φ ist die Wechselwirkungsenergie zwischen einem Xe-Atom und einem Tellur-Atom, und $\Delta E = 8.5$ eV ist der Energieabstand zwischen dem Grundzustand und dem angeregten Zustand des Xe-Atoms.

Für die Berechnung der Hyperfeinfelder q und b in Gl. (4-14) muß eigentlich die Wechselwirkung zwischen dem Xe-Atom und

allen Tellurnachbaratomen berücksichtigt werden. Im allgemeinen genügt es, nur die nächsten Nachbarn zu berücksichtigen, da der Beitrag von anderen Ionen aufgrund des Abstandsfaktors zu q bzw. b vernachlässigbar ist. Der Beimischungskoeffizient $(f_{6s})^2$ in Gl. (4-15) berücksichtigt jedoch nur die Wechselwirkung zwischen dem Xe-Atom und einem Tellurnachbar-Atom. Es wird also vernachlässigt, daß mehrere Tellurnachbarn vergleichbare Beiträge gleichzeitig liefern können, was zur teilweisen Kompensation der Hyperfeinfelder führen kann. Diese Korrektur dürfte aber nicht allzu groß sein, da flüssiges Tellur eine - verglichen mit gewöhnlichen Metallen - kleine Koordinationszahl (Anzahl der nächsten Nachbaratome) von Z = 2,5 ... 3 hat (TouC 72).

Das Magnetfeld des 6s-Elektron im freien Xenon-Atom wird durch das Magnetfeld des 6s-Elektron im freien Atom ($5p^2 5p^6 6s$) abgeschätzt. Nach (Kopf 58) ist dieses um das Verhältnis der "inneren Ladung z_i" zu reduzieren; also für ($5s^2 5p^5 6s$) auf 54/55, da die äußere Ladung in beiden Fällen eins beträgt. Damit ergibt sich der Wert b_{6s} für das Xe-Atom zu:

$$(b_{6s}) = 2.0 \cdot 10^6 \text{ Gauß} \qquad (4\text{-}16)$$

Für ein freies Xe-Atom beträgt der EFG eines 5p-Loches nach (FauM 61):

$$(q_{5p}) = 5.8 \cdot 10^{16} \text{ esu/cm}^3 \qquad (4\text{-}17)$$

IV-3-3-1 Modifizierte Buckingham-Potential zur Bestimmung der Bindungsenergie von XeTe

Für die Abschätzung der Hyperfeinfelder b und q nach Gl. (4-14) fehlt noch die Wechselwirkungsenergie ϕ zwischen Xe und Te im flüssigen Tellur. Bisher gibt es keine direkte Messung dieser Größe, da Xenon nur mit den Elementen der größten Elektronegativität (Halogeniden) stabile Verbindungen eingeht. Ein theoretisches Modell für die Wechselwirkungsenergie zwischen freien Xe-Atomen geht davon aus, daß die Wechselwirkungsenergie durch ein Van-der-Waals-Potential (anziehend) und ein Austauschpotential (abstoßend) bestimmt sind. Solche Potentiale führen zu Hyperfeinfeldern im Xenongas und in flüssigem Xenon (WarN 66, Adri65). Analog dazu wird hier ein modifiziertes Buckingham-Potential (HirC 64) für das XeTe - System gewählt:

$$\varphi(r) = B \cdot e^{-A \cdot r} - C/r^6 \qquad (4\text{-}18)$$

mit $A = 2.93\ \text{Å}^{-1}$

$B = 6000$ eV

$C = 866\ \text{eV/Å}^6$

Der erste Term repräsentiert das abstoßende Austauschpotential und der zweite das anziehende Van-der-Waals-Potential. Die Konstanten A, B und C enthalten die atomaren Eigenschaften des

Xenon-Edelgasatoms und des flüssigen Tellurs und werden im Anhang (VI-2) abgeleitet. r ist der Abstand zwischen Xenon- und Telluratom. Abb. IV-b zeigt das Potential als Funktion des Abstandes r. Der Nulldurchgang des Potentials liegt bei r = 2·70Å und das Minimum von φ_{min} = -0.29 eV liegt bei r_{min} = 3.20Å.

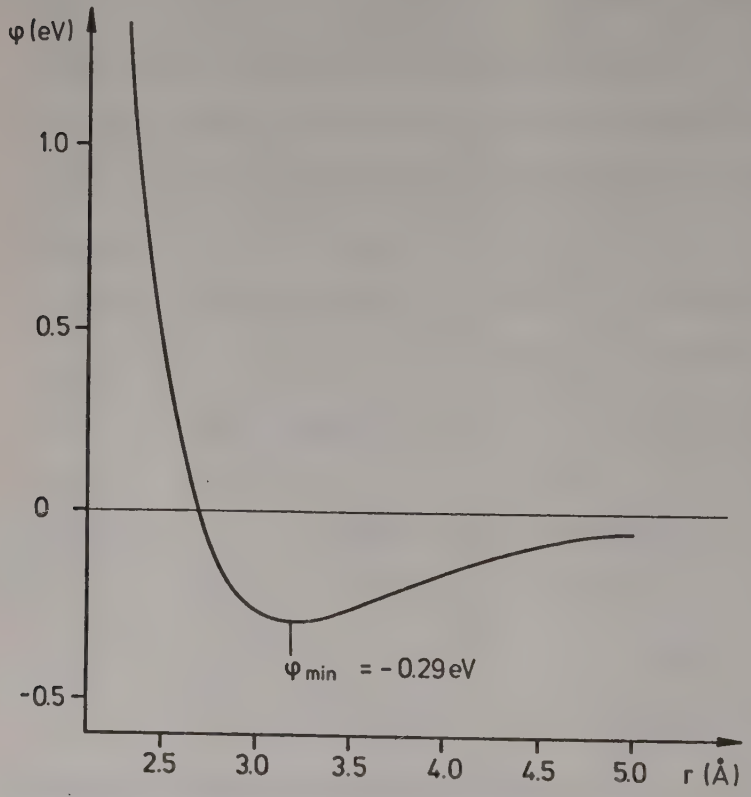


Abb. IV-b Modifiziertes Buckingham-Potential für das XeTe - System in Abhängigkeit vom interatomaren Abstand r.

Für die Bestimmung des Beimischungskoeffizienten $(f_{6s})^2$ und damit der Relaxationsrate bleibt es noch offen, bei welchem Abstand r das Potential $\varphi(r)$ genommen werden soll. Wie bereits diskutiert, ist die Korrelationszeit τ maßgebend für die Dauer der Wechselwirkung zwischen dem Xe- und den Tellur-Atomen, die zum Relaxationsprozeß führt. Wir nehmen an, daß die Bindung während dieser Korrelationszeit τ "stabil" ist. Das bedeutet, daß das Potential in der Nähe des Minimums des Potentials φ_{min} = -0.29 eV maßgebend für den Relaxationsprozeß ist. In wieweit das richtig ist, wird in IV-3-4 untersucht. Im Fall von ^{131}XeXe führt sie zu einer brauchbaren Erklärung der experimentell (WarN 66) bestimmten Quadrupolrelaxationsraten.

Mit $\varphi = \varphi_{min}$ = -0.29 eV ergibt sich der Beimischungskoeffizient $(f_{6s})^2$ nach (4-14) zu:

$$(f_{6s})^2 = 0.0341 \qquad (4\text{-}19)$$

Mit den vorher genannten Werten g = -0.196, (b_{6s}) = 2.0 · 10^6 G und τ_e = 1.4 . 10^{-16} s ergibt sich die gesuchte magnetische Rate nach Gl. (4-2) zu:

$$R_M \simeq 1.2/s \quad \text{bzw.} \quad \tau_M = 870 \text{ ms} \qquad (4\text{-}20)$$

Dementsprechend wird die Qudrupolrate mit den Werten $|Q| = 0.2$ barn, $(q_{5b}) = 5.8.10^{16}$ esu/cm^3 und $\tau_e = 6 \cdot 10^{-12}$ s (für T=743°K) nach Gl. (4-4) bestimmt:

$$R_Q \simeq 527/s \quad \text{bzw.} \quad \tau_Q \simeq 1.90 \text{ ms} \tag{4-21}$$

Die berechnete Gesamtrate $R_{the}(743^oK) = R_M + R_Q = 528/s$ stimmt mit der gemessenen Rate von $R_{exp}(743^oK) = (568 \pm 128)/s$ überraschend gut überein.

Das Verhältnis der magnetischen Rate zur Quadrupolrate (bei T = 743°K) von:

$$R_M/R_Q \simeq 2.2 \cdot 10^{-3} \tag{4-22}$$

ist konsistent mit der vorher in IV-3-1 diskutierten Annahme, daß die Quadrupolrate im Temperaturbereich kurz oberhalb des Schmelzpunktes dominant ist. Nach diesem Modell ist dieses Verhältnis R_M/R_Q unabhängig von dem Beimischungskoeffizienten $(f_{6s})^2$, da hier derselbe angeregte Zustand den Beitrag zur $\overline{b^2}$ und $\overline{q^2}$ liefert. Nach Gl. (4-2) und (4-4) gilt nämlich:

$$\frac{R_M}{R_Q} = f(I,k) \; \frac{g^2\mu_N^2}{Q^2e^2} \cdot \frac{(f_{6s})^2}{(f_{6s})^2} \cdot \frac{(b_{6s})^2}{(q_{5p})^2} \cdot \frac{\tau_e}{\tau_i} \tag{4-23}$$

wobei f(I,k) eine Konstante ist, die nur von I und k abhängt. Obwohl R_M/R_Q unabhängig von f_{6s} ist, so ist es doch von der Temperatur abhängig, da sowohl τ_e schwach als auch τ_i stark

temperaturabhängig sind.

Wir kommen zurück zur Wahl von ϕ_{min} als dem geeignetesten Wert für die Abschätzung der Beimischungsamplitude (f_{6s}). Der entsprechende Abstand r_{min} liegt bei 3.20 Å. Der mittlere Abstand zwischen zwei Telluratomen im festen Zustand beträgt 2.86 Å und in flüssiger Phase bei Temperaturen wenig oberhalb des Schmelzpunktes 2.90 Å (BusG 55). Im flüssigen Edelgas Xenon beträgt der Abstand bei 88°K etwa 4.4 Å (LanB 1). In der Gas-Phase nehmen wir einen Wert von 4.45 Å; bei diesem Abstand hat das modifizierte Buckingham-Potential für Xe-Edelgas sein Minimum (MasR 54). Als Mittelwert von 2.90 Å und 4.45 Å für den mittleren Abstand der XeTe-Bindung ergibt sich ein Wert von 3.7 Å. Dieser Wert, eingesetzt in das modifizierte Buckingham-Potential (4-18), liefert eine Relaxationsrate, die etwa um 30% geringer ist, als in (4-20) bzw. (4-21) hierfür angegeben wird.

Als einfache Abschätzung zur Berücksichtigung der kinetischen Energie der Atome kann der Ausdruck kT dienen. Für T = 700 K ergibt sich kT = 0.06 eV. Durch diesen zusätzlich verfügbaren Energiebetrag werden auch Zustände mit dem Potential zwischen ϕ_{min} = -0,29 eV und ϕ = -0,29 eV + 0,06 eV = -0,23 eV realisierbar. Das kann zu einer maximalen relativen Änderung der Relaxationsrate von $\frac{R(0,29\ eV) - R(0,23\ eV)}{R(0,29\ eV)} \simeq 35\%$ führen.

Wegen der noch viel größeren Unsicherheiten anderer Parameter, z.B. derjenigen des Quadrupolmoments Q, werden wir diese Unsicherheiten für die Gesamtrate nicht weiter diskutieren.

IV-3-3-2 Abschätzung der Bindungsenergie des XeTe-Systems aufgrund experimenteller Daten

Da uns kein experimenteller Wert für die XeTe-Bindungsenergie vorliegt, werden wir φ_{XeTe} aus dem systematischen Verhalten der Bindungsenergien zweiatomiger Moleküle abschätzen. Tellur gehört zusammen mit Sauerstoff, Schwefel und Selen zu den Elementen der VI-Hauptgruppe. Im allgemeinen nimmt die Bindungsenergie zwischen einem bestimmten Atom und Elemtenten einer Gruppe mit zunehmender Ordnungszahl Z ab. Solches Verhalten zeigen z.B. die Bindungsenergien der zweiatomigen Moleküle CuO, CuSe, CuS und CuTe, die 4.16 eV, 3.12 eV, 3.04 eV und 1.82 eV betragen. Tab. IV-A zeigt die Dissoziationsenergie der zweiatomigen Moleküle der verschiedenen Elemente mit den Elementen der VI-Hauptgruppe (Weas 71).

Die Dissoziationsenergie ist bis auf kleine vernachlässigbare Vibrationsbeiträge identisch mit der Bindungsenergie. Während die Bindungsenergie durch das Minimum des Potentials definiertist, wird die Dissoziationsenergie durch das nierigste tatsächlich vorhandene Energieniveau bestimmt. Dieses muß geringfügig über dem Energieminimum liegen, denn nach der Quantenmechanik hat ein Molekül bei $T \rightarrow 0^{o}K$ auch eine Vibrationsenergie von $1/2\ \hbar\omega$. Die oben angegebenen Werte gelten zwar für $T = 298^{o}$ K, aber wir können sie trotzdem für den uns interessierenden Temperaturbereich benutzen, weil die Bindungsenergie kaum temperaturabhängig ist.

Tab. IV-A Dissoziationsenergie zweiatomiger Moleküle verschiedener Elemente mit den Elementen der VI-Hauptgruppe. Die Beträge der Dissoziationsenergie werden in eV angegeben.

	O	Si	S	Cu	Zn	Ge	Se	Sn	Te	Pb	Bi
O	5.16	8.15	5.39	4.16	2.86	6.81	-	5.42	3.95	4.29	3.12
Si	5.39	6.42	4.42	3.12	2.12	5.71	3.95	4.81	3.51	3.59	2 99
S	4.38	5.51	3.95	3.04	1.43	4.94	3.20	4.16	2.78	2.71	2.43
Te	3.95	5.25	3.51	1.82	-	4.03	2.78	3.30	2.38	2.27	2.25
$\frac{\phi(Te-x)}{\phi(O-x)}$	0.77	0.64	0.65	0.47	-	0.59	-	0.61	0.60	0.53	0.72

Der experimentelle Wert für die Bindungsenergie zweiatomiger Xe-O-Moleküle beträgt nach (CooC 61) $\varphi_{XeO} = 0.335$ eV. Wir nehmen an, daß die Bindungsenergie der Xenonatome mit den Elementen der VI-Hauptgruppe dasselbe Verhalten zeigt, wie in der Tab. IV-A angegeben wird. Hiernach sollte die Bindungsenergie des XeTe-Moleküls kleiner als 0.34 eV sein.

Wir vergleichen nun die Bindungsenergie von Sauerstoff- und Telluratomen zu den Atomen der anderen Elemente. Die Verhältnisse der Tellurbindungsenergien Te-O, Te-Si, Te-S, Te-Cu... usw. zu denjenigen von Sauerstoff O-O, O-Si, O-S, O-Cu ... usw. sind in der letzten Reihe der Tab. IV-A als $\phi(Te-x)/\phi(O-x)$ angegeben. x bedeutet hier die Atome O, Si S, Cu... usw. Alle Werte liegen im Bereich von 0.62 ± 0.15. Wir wollen nun annehmen, daß dieser Mittelwert ungefähr das Verhältnis der Bindungsenergie des Xe-Te-Moleküls zu der des Xe-O-Moleküls ist. Die gesuchte Xe-Te-Bindungsenergie ergibt sich dann zu:

$$\varphi_{XeTe} = -0.21 \pm 0.05 \text{ eV}$$

Dieser Wert stimmt etwa mit dem Wert $\varphi_{min} = -0{,}29$ eV überein, der aus dem modifizierten Buckingham-Potential gewonnen wird. Nach Gl. (4.14) haben wir hier $(f_{6s})^2 = 0.025$, und dementsprechend beträgt die Relaxationsrate R bzw. die Relaxationszeit τ:

$$R = 277/s, \quad \text{bzw.} \quad \tau = 3.61 \text{ ms}$$

Im Rahmen der Näherung (4-14) und (4-15) für die Bestimmung der Hyperfeinfelder im XeTe-System können wir als dritten Schätzwert die experimentelle Bindungsenergie von Xenonatomen mit verschiedenen Metalloberflächen nehmen. Für das Xe-Au, Xe-Ag und Xe-W-System betragen sie nach (Hobs 74) etwa -0.4 eV. Damit ist $(f_{XeM})^2 = 0.047$ und R = 1000/s bzw. τ = 1.0 ms. Für den Fall eines Xenonatoms in flüssigem Tellur gibt eine solche Atom-Metalloberfläche-Bindungsenergie aber nur eine grobe Abschätzung für die Größenordnung der Relaxationsrate.

IV-3-4 Modifizierte Adrian-Näherung

Adrian (Adri 65) berechnete die Quadrupolrate im Edelgas Xenon durch direkte Anwendung der quantenmechanischen Störungstheorie. Er nahm an, daß der EFG an einem Xe-Kernort durch eine Störung zwischen zwei Xenonatomen hervorgerufen wird. Die Quadrupolwechselwirkungskonstante für das Xenonatom ist durch

$$eQq = \quad < \Psi \,|H_Q|\, \Psi > \qquad (4\text{-}24)$$

gegeben. Ψ ist die gestörte Wellenfunktion der beiden Xenonatome und wird bis zur zweiten Ordnung berücksichtigt. Der Hamilton-Operator für die Quadrupolwechselwirkung lautet:

$$H_Q = e^2 Q \sum_n (3\cos^2\theta_n - 1)/\, r_n^3$$

Hierin ist Q das Quadrupolmoment, r_n ist der Abstand vom Kernort zum n-ten Elektron und θ_n ist der Winkel zwischen $\vec{r}_n$ und der Achse durch die beiden Xenonkerne. $\sum_n$ repräsentiert die Summation über alle Elektronen. Das ursprünglich kugelsymmetrische Potential eines isolierten Xenonatoms wird auch hier durch ein modifiziertes Buckinghampotential (4-18) gestört, dessen Konstanten

$$A = 2.92/\text{Å} \qquad B = 7541\ \text{eV} \qquad C = 287\ \text{eV/Å}^6 \qquad (4\text{-}25)$$

aus (MasR 54) entnommen wurden.

Als Ergebnis seiner Näherung ergeben sich die beiden Beiträge zum EFG des Xe<u>Xe</u>-Systems zu (r in Å):

$$q_{VdW} \sim -(q_{5p})\ 3\alpha^2/8r^6 = (q_{5p})\ 6.33/r^6 \qquad (4\text{-}26)$$

$$q_{AUS} \sim (q_{5p})\ 160.4\ e^{-2.44\ r} \qquad (4\text{-}27)$$

$$q_{Xe\underline{Xe}} \sim (q_{5p})\ (160.4\ e^{-2.44\ r} - 6.33/r^6) \qquad (4\text{-}28)$$

Hierin ist α die atomare Polarisierbarkeit des Xenonatoms, q_{5p} der EFG des 5p-Lochs des Xenonatoms. q_{VdW} bzw. q_{AUS} repräsentiert den EFG aus dem Van der Waals-Potential bzw. dem Austauschpotential. Wie man sieht, hängt der EFG $q_{Xe\underline{Xe}}$ jetzt wieder nur von der "richtigen" Wahl des interatomaren Abstands der beiden Xenonatome r ab.

Nehmen wir die Näherung (4-14) zur Berechnung des EFG des Xe<u>Xe</u>-Systems, so erhalten wir

$$q_{Xe\underline{Xe}} = (q_{5p})\ (f_{6s})^2 = (q_{5p}) \cdot \phi_{Xe\underline{Xe}}/8.5\ eV \qquad (4\text{-}29)$$

Der durch quasi-molekular und modifizierte Adrian-Näherungen (4-28) und (4-29) erhaltene EFG q liefert dasselbe Ergebnis für r = 4.45 Å. Bei diesem Abstand hat das modifizierte Buckingham-Potential für das XeXe-System $\varphi_{Xe\underline{Xe}}$ mit den Parametern aus (4-25) sein Minimum:

$$(\varphi_{Xe\underline{Xe}})_{min} = -0.020\ eV \qquad (4\text{-}30)$$

Diese Übereinstimmung ist die Grundlage für die Behandlung in IV-3-3-1
Der experimentelle Wert für φ_{min} liefert eine Bindungsenergie zweiatomiger Xenonmoleküle von (0.03 ± 0.01) eV (Shar 67). Ein anderes experimentelles Ergebnis gibt einen Wert von 0.023 eV (PauW 65). Diese beiden Werte stimmen gut mit der aus dem modifizierten Buckingham-Potential gewonnenen Bindungsenergie überein. Damit ist gezeigt , daß die Wahl der Bindungsenergie φ_{min} für die Berechnung des EFG nach G1 (4-14) für das XeXe-System das richtige Ergebnis liefert.

Der gewonnene Wert q in (4-28) bzw. (4-29) wird nun verwendet, um die Relaxationsrate in flüssigem ^{131}Xe (Q = -0.12 barn) zu berechnen. Die beobachtete Quadrupolrate beträgt $R_Q \simeq 12/s$ bei 250° K (WarN 66). Mit G1. (4-4) erhalten wir diesen Wert, falls die Korrelationszeit für flüssiges Xenon $\tau_i = 2.2 \cdot 10^{12} s$ ist. Der experimentelle Wert der Korrelationszeit für flüssiges Xenon existiert bisher nicht . Als Vergleich weisen wir auf den Wert für flüssiges Argon von $\tau_i = 1.0 \cdot 10^{-12} s$ hin (Egel 67).

Es ist leider nicht möglich, das Adrian-Modell für das XeTe-System exakt zu entwickeln. Wir können nur den Van der Waals-Beitrag zum EFG in (4-26) für das XeTe-System modifizieren. Verwenden wir hier für die Polarisierbarkeit des Tellur den Wert $\alpha_{Te} = 25 \cdot 10^{-24} cm^3$ (Anhang VI-2), bekommt man einen Wert für die Quadrupolrate $R_Q = 380/s$ für r = 3.20 Å. Dieser Wert stimmt hinreichend gut überein mit dem aus der quasimolekularen Näherung berechneten Wert $R_Q = 527/s$ (bei demselben Abstand r=3.20Å,

siehe IV-3-3-1) und der gemessenen Rate R_Q = 568/s (bei 743° K). Die auftretende Diskrepanz zwischen den beiden berechneten Werten kommt wahrscheinlich daher, daß wir nur den Van der Waals-Beitrag und nicht auch den Austauschpotential-Beitrag im Adrian-Modell modifiziert haben. Trotzdem haben wir aus der von Adrian für das XeXe-System abgeleiteten Störungstheorie die richtige Größenordnung der Quadrupolrate für das XeTe-System, wenn wir den Van der Waals-Beitrag und den interatomaren Abstand für das XeTe-System entsprechend berücksichtigen.

IV-3-5 Metallische Näherung

Eine metallische Näherung zur Abschätzung der Quadrupolrate im XeTe-System wird in (HarH 76) diskutiert. Betrachten wir das XeTe-System als ein metallisches System, so kann der EFG folgendermaßen beschrieben werden (Shol 67):

$$q(r) = \frac{2}{3} \; A \; f(r,k_f) \; (1-\gamma_\infty) \qquad (4\text{-}31)$$

Der Faktor $\frac{2}{3}\cdot A\cdot f(r,k_f)$ repräsentiert den EFG, der von einem metallischen Ion im Abstand r hervorgerufen wird und $(1-\gamma_\infty)$ den Sternheimer-Effekt zur Verstärkung des EFG durch die Polarisation der Elektronenhülle des beobachteten Sondenkernes. Die

radiale Abhängigkeit des EFG in (4 -31) wird vom abgeschirmten Potential nach (Harr 66) abgeleitet:

$$V(r) = A \cos(r \cdot k_f)/(2k_f \cdot r)^3 \qquad (4\text{-}32)$$

Hierin ist $k_F = (3\pi^2 \cdot \rho \cdot z)^{1/3}$, z ist die Anzahl der Valenz - elektronen pro Atom und ρ ist die Dichte.

Diese Näherung ist insofern fraglich, als das Xenonatom keine Leitungselektronen an die Tellurnachbaratome abgeben kann. Jedoch ist die Konzentration der Xenonatome sehr gering ($<$ 1 ppm), so daß die Ladungsverteilung um die Telluratome davon wenig beeinflußt wird. Die atomaren Eigenschaften des Xenonatoms werden hier dadurch berücksichtigt, daß der Sternheimerfaktor $(1-\gamma_\infty) = 176$ (FeiJ 69) für ein freies Xenonatom und der bereits diskutierte interatomare Abstand r = 3.20 Å für das XeTe-System genommen werden. Mit diesen Werten ergibt sich die Quadrupolrate zu

$$R_Q \simeq 500/s \quad \text{bzw.} \quad \tau_Q \simeq 2.0 \text{ ms} \qquad (4\text{-}33)$$

IV-3-6 Zusammenfassung der Ergebnisse des Kap. (IV-3)

Die relative Größe der magnetischen Rate und der Quadrupolrate im flüssigen ^{132}XeTe- System wurde anhand der Hyperfeinwechselwirkungsmessungen in flüssigem ^{129}XeXe-, ^{125}TeTe- und ^{131}XeXe-System diskutiert. Die Vermutung, daß die Quadrupolrate gegenüber der magnetischen Rate bei niedrigem Temperaturbereich dominant ist, wird durch das Ergebnis der quasimolekularen Näherung bestätigt.

Ausgehend von drei verschiedenen Näherungen stimmt die berechnete Relaxationsrate mit der beobachteten Rate gut überein. Die Ergebnise sind jedoch abhängig vom mittleren interatomaren Xenon-Tellur-Abstand r, dessen wirklicher Wert zur Zeit unbekannt ist. Das Ergebnis des modifizierten Adrian-Modells hängt davon am stärksten ab; wegen der großen Unsicherheit des Quadrupolmoments Q ($0.05 < Q < 0.8$ barn) ist jedcoh ein Wert für r zwischen 2.65 Å und 3.55 Å mit diesem Modell noch verträglich.

Obwohl die aus den drei unterschiedlichen Näherungen berechneten Raten verschieden stark von r abhängen, können wir keine eindeutige Aussage machen, welche Näherung hier am besten geeignet ist.

IV-4 Temperaturabhängigkeit der Relaxationsrate

IV-4-1 Quadrupolrelaxation mit Diffusionsansatz

Es wurde oben bereits diskutiert, daß die Quadrupolrelaxation im XeTe-System möglicherweise dominant sein könnte. Deswegen befassen wir uns zunächst mit dem Fall, daß die Temperaturabhängigkeit allein auf Quadrupolrelaxation zurückzuführen ist. (Siehe Gl. (4-5),(4-6)und (4-8)). Wegen unzureichender Information über Dynamik und Struktur des flüssigen XeTe-Systems wird hier nur der Vergleich mit Gl. (4 -5) eingehender durchgeführt.

Die Dichte $\rho(T)$ des flüssigen Tellurs ändert sich im Temperaturbereich von T_M bis 925°K um ca. 1% (GlaC 69). Im Vergleich zur Änderung der beobachteten Rate (ca. 100%) kann man die Dichte als konstant betrachten. Damit hängt die Quadrupolrate hauptsächlich von der Diffusionskonstante D(T) ab:

$$R_Q \sim D^{-1}(T) \qquad (4-34)$$

Bisher gibt es keine experimentellen Daten für die Diffusion im interessierenden Temperaturbereich. Wir nehmen daher als Modell für die Diffusion einen thermisch aktivierten Prozeß:

$$D(T) = D_0 \, e^{-W/k_B T} \qquad (4-35)$$

Hierin ist D_o der Grenzwert der Diffusionskonstante für sehr hohe Temperatur, W die Aktivierungsenergie und k_B die Boltz-

mannkonstante. Aus Viskositätsmessungen läßt sich eine Aktivierungsenergie von 0.24 eV ableiten (Anhang IV-3). Dieser Wert wird gewählt, weil in idealen Flüssigkeiten eine direkte Beziehung zwischen der Diffusionskonstante D(T) und der Viskosität $\eta(T)$ besteht: $D(T) \quad k_B T/\eta(T)$ (HirC 64). $\eta(T)$ ist im interessierenden Temperaturbereich bekannt. Die gemessene Rate kann somit an dem Ausdruck

$$R(T) = R_Q(T) = A\, e^{W/k_B T} \qquad (4\text{-}36a)$$

angepaßt werden. Das Fitergebnis ist unbefriedigend, da es die Zunahme der Rate oberhalb 900°K qualitativ nicht wiedergibt.

Beer et al. (BeeR 72) geben eine ganze Reihe empirischer Ansätze für die Temperaturabhängigkeit der Viskosität an. Es erscheint deshalb nicht unvernünftig, auch hier weitere Ausdrücke für R(T) zu versuchen:

$$R(T) = R_Q(T) \quad = A\, T\, e^{W/k_B T} \qquad (4\text{-}36b)$$

Der Faktor T sollte den Anstieg der Rate bei höheren Temperaturen wiedergeben. Die Aktivierungsenergie W wurde dabei sowohl festgehalten (0.24 eV) als auch als freier Parameter variiert (0.21eV) In keinem der beiden Fälle konnte eine brauchbare Anpassung erreicht werden. Auch eine mit T noch stärker ansteigende Funktion wie $A\, T^2\, e^{W/k_B T}$ ergibt keinen guten Fit (Abb. IV-c).

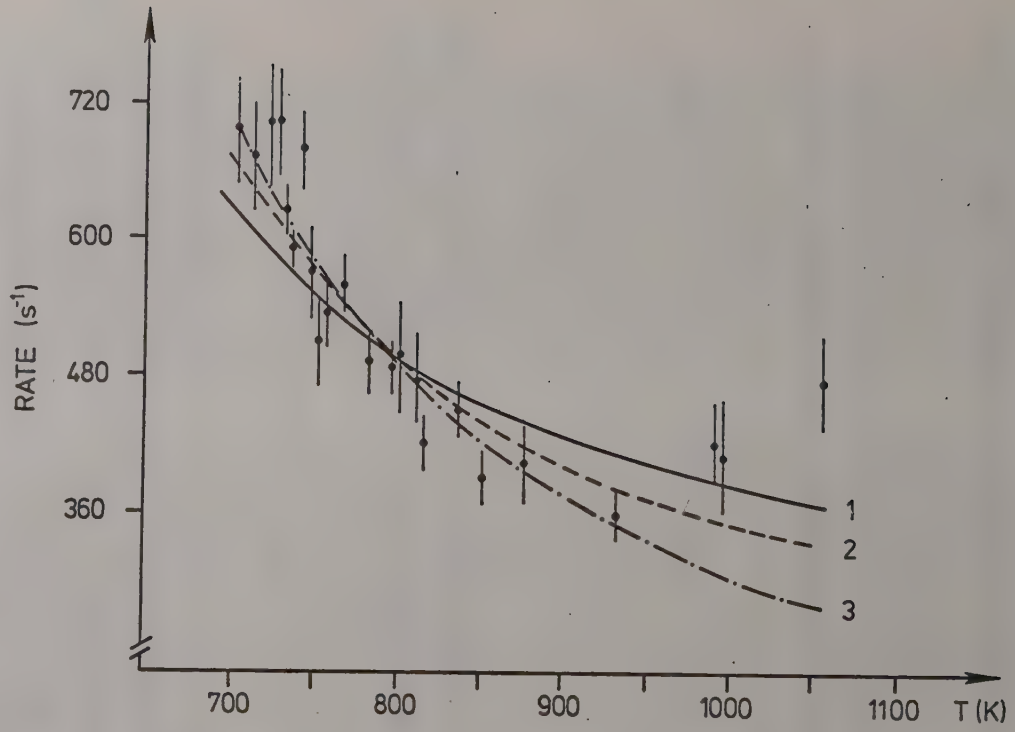


Abb.IV-c Anpassung der Relaxationsrate mit den Funktionen $A \cdot T \cdot e^{W/k_B}$: W = 0.24 eV (3) ; W = 0.21 eV (2) und $A \cdot T^2 \cdot e^{W/k_B T}$: W = 0.24 eV (1)

IV-4-2 Ansatz mit Quadrupolrelaxation und magnetischer Relaxation

IV-4-2-1 Korringarelation als Ansatz für magnetische Relaxation

Da zur Relaxation jedoch auch magnetische Hyperfeinwechselwirkung beitragen kann, wollen wir weiterhin Ansätze untersuchen, die solchen Effekten Rechnung tragen. Im einfachsten Fall ist die Temperaturabhängigkeit der magnetischen Rate durch die Korringarelation gegeben (siehe Gl. 4 -3). Mit temperaturunabhängigem $k(\alpha)$ (Korrekturfaktor der Elektron-Elektron-Wechselwirkung) und temperaturunabhängiger Knightshift K bekommen wir für die magnetische Rate $R_M \sim T$. Mit Berücksichtigung der Quadrupolbeiträge haben wir dann folgenden Ansatz:

$$R(T) = R_Q(T) + R_M(T) = A\, e^{W/k_B T} + B \cdot T \qquad (4\text{-}37)$$

Ein solcher Ansatz liefert ein befriedigendes Ergebnis für die in den letzten Jahren durch Implantation eines Sondenkernes in flüssiger Matrix gemessenen Relaxationsraten in folgenden Systemen: ^{71}GeGa, ^{71}GeInGa, ^{115}SnIn, ^{115}SnInGa und ^{205}PbHg (Rieg 75).

Mit dem Ansatz (4 -37) wird die Relaxationsrate gefittet. Die Konstanten A und B werden als freie Parameter variiert, während W wahlweise festgehalten (0.24 eV) oder als freier Parameter betrachtet wird. Den besten Fit ergibt der folgende Parametersatz:

$A = (0.17 \pm 0.05)/s \qquad B = (0.35 \pm 0.04)/^{o}Ks \qquad W = (0.48 \pm 0.09)eV$

Dieser Fit gibt eine bessere Anpassung für die Rate bei hohen Temperaturen als bei festgehaltener Aktivierungsenergie W (siehe Abb. IV-d).

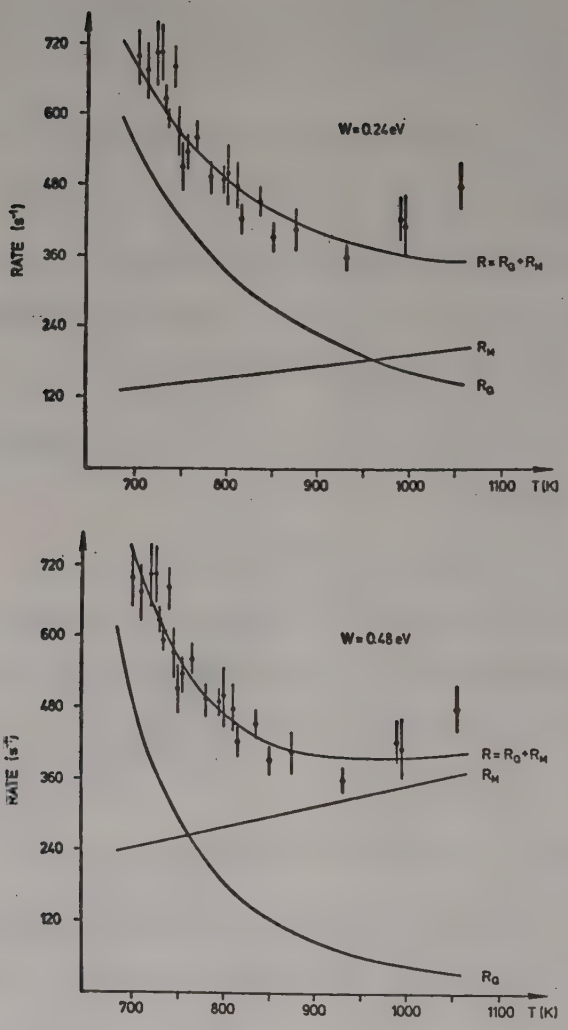


Abb. IV-d Anpassung der Relaxationsrate mit der Funktion

$$R = R_Q + R_M = Ae^{W/k_BT} + B \cdot T$$

Die gefittete Aktivierungsenergie von W = 0.48 eV kann jedoch mit den bisherigen experimentellen Daten nicht erklärt werden.[+] Es fällt auf, daß der Beitrag der magnetischen Rate in den beiden Fällen groß ist. Beim ersten Fit (W = 0.24 eV) beträgt das Verhältnis der magnetischen Rate zur Quadrupolrate

$R_M/R_Q = 0.33$ (743^oK) bzw. $R_M/R_Q = 1.40$ (1053^oK)

Die entsprechenden Werte für den zweiten Fit (W = 0,48 eV) sind noch größer:

$R_M/R_Q = 0.80$ (743^oK) bzw. $R_M/R_Q = 10.40$ (1053^oK).

Das bedeutet, daß die magnetischen Raten bei niedrigen Temperaturen vergleichbar mit den Quadrupolraten und bei höheren Temperaturen sogar dominant sind. Ein solches Ergebnis ist aber nicht konsistent mit dem in Kap. (IV-3) gewonnenen Ergebnis.

IV-4-2-2 Modifizierte Korringarelation als Ansatz für die magnetische Relaxation

In Gleichung (IV-37) wurde angenommen, daß der Korrekturfaktor $k(\alpha)$ und die Knight-Shift-Konstante K wie bei normalen flüssigen Metallen temperaturunabhängig sind. Messungen der magnetischen Relaxation in flüssigem Tellur ^{125}TeTe (Warr 72) zeigen, daß sich K im Temperaturbereich von 700-1200^oK um etwa 60% ändert. Die magnetische Rate geht nicht linear mit der Temperatur,und das Verhältnis zwischen der gemessenen Rate und der Korringarate $(R_M)_{exp} / (R_M)_{Korr}$ ist nicht konstant. Warren interpretiert, daß in flüssigem Tellur ein Übergang von einem Halbleiterzustand in

[+]Vgl. Anhang (^{VI}-3)

einen metallischen Zustand stattfindet. Dieser Prozeß wird bei 900°K abgeschlossen, d.h. oberhalb dieser Temperatur ist flüssiges Tellur metallisch.

Für das XeTe-System wird die Korringarelation modifiziert. Wir werden annehmen, daß die magnetische Rate im XeTe-System denselben Temperaturverlauf wie diejenige im TeTe-System besitzen. Die magnetische Rate im XeTe-System kann dann nach Gl. (4 -2) bzw. Gl. (4 -3) folgendermaßen beschrieben werden:

$$(R_M)_{XeTe} = (R_M)_{TeTe} \quad 0.0362 \quad \alpha \qquad (4\text{-}38)$$

Der Faktor 0.0362 berücksichtigt die verschiedenen g-Faktoren und tensoriellen Ausrichtungsgrade k in den beiden Systemen. Der Faktor α repräsentiert das Verhältnis $\overline{b^2\tau_e}$, bzw. $k(\alpha)K^2$ für ein Xenon- und ein Telluratom in flüssigem Tellur:

$$\alpha = \frac{(\overline{b^2\tau_e})_{XeTe}}{(\overline{b^2\tau_e})_{TeTe}} = \frac{(k(\alpha)K^2)_{XeTe}}{(k(\alpha)K^2)_{TeTe}} \qquad (4\text{-}39)$$

Mit der Annahme, daß die Elektronkorrelationszeit für beide System gleich ist, ist α gleich $(\overline{b^2\tau_e})_{XeTe} / (\overline{b^2\tau_e})_{TeTe}$. $(K)_{TeTe}$ wurde bis 1200°K gemessen, aber $(R_M)_{TeTe}$ nur bis 900°K, so daß $(R_M)_{TeTe}$ oberhalb dieser Temperatur durch die Korringarelation extrapoliert werden mußte. Oberhalb dieses Wertes ist flüssiges Tellur bereits metallisch, so daß die Korringarelation wieder gültig ist.

Die beobachtete Rate wurde mit dem Ansatz

$$R = A\, e^{W/k_B T} + \alpha\, 0.0362\ \ (R_M)_{\underline{TeTe}} \qquad (4\text{-}40)$$

gefittet. Der beste Fit (Abb. IV-f) wird mit folgenen Parametern gewonnen:

$$A = (0.29\pm0.10)/s \qquad \alpha = 0.90\pm0.11 \qquad W = (0.46\pm0.08)\,eV$$

Wenn die Aktivierungsenergie W festgehalten wird (0.24 eV), haben wir einen Fit mit folgenden Parametern:

$$A = (11.0\pm0.6)/s \qquad \alpha = 0.48\pm0.08$$

Der Ansatz (4-40) gibt wie der Ansatz (4-37) ein Fitergebnis mit einem großen Beitrag der magnetischen Rate :

$$\begin{aligned} W = 0.24\ eV&: \quad R_M/R_Q = 0.24\ (743^oK) \text{ bzw. } R_M/R_Q = 1.24\ (1053^oK) \\ W = 0.46\ eV&: \quad R_M/R_Q = 0.55\ (743^oK) \text{ bzw. } R_M/R_Q = 8.02\ (1053^oK) \end{aligned} \qquad (4\text{-}41)$$

Wie man sieht, ist die magnetische Rate bei hohen Temperaturen dominant. Der beste Fit wird hier auch mit einer hohen Aktivierungsenergie von 0.46 eV gewonnen, die etwa doppelt so groß wie der aus der Viskosität gewonnene Wert von W = 0.24 eV. Aber die mit diesem Wert gefitteten magnetischen Raten sind auch bei hohen Temperaturen dominant; bei Temperaturen kurz oberhalb des Schmelzpunktes ist sie um einen Faktor 10^2 größer als die magnetische Rate, die durch die quasimolekulare Näherung berechnet wird. Durch eine Verschiebung der gemessenen Rate wegen der Unsicherheit der Ausrichungsgradparameter A_2 um etwa ±15% (siehe III-2-3) ändert

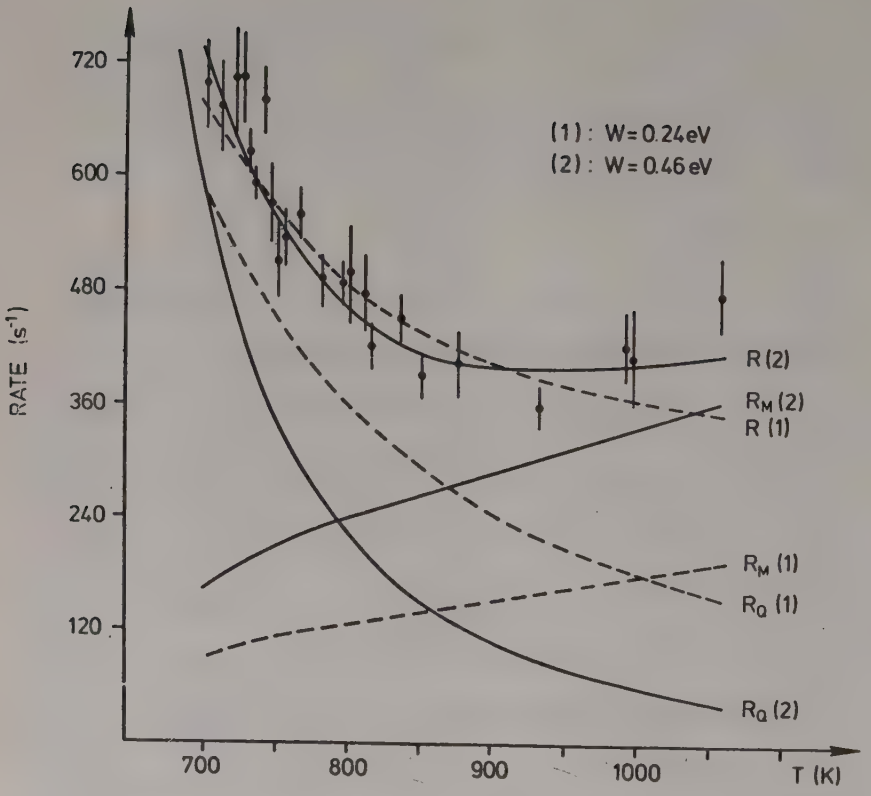


Abb. IV-e Anpassung der Relaxationsrate mit der Gl. (4-40).

sich die magnetische Rate auch dementsprechend, aber sie kann die Diskrepanz von zwei Größenordnungen nicht erklären.

IV-4-3 Zusammenfassung der Ergebnisse des Kap. IV-4

Die Temperaturabhängigkeit der Relaxationsrate konnte nicht mit einem Quadrupolansatz in Diffusions-Näherung erklärt werden, da bei hohen Temperaturen keine Anpassung erreicht werden konnte. Erst die Hinzunahme einer magnetischen Rate (Korringarelation) lieferte ein befriedigendes Ergebnis. Auch die modifizierte Korringarelation als Ansatz für die magnetische Relaxation gab zusammen mit dem exponentiellen Ansatz für die Quadrupolrelaxation eine recht befriedigende Anpassung an die gemessenen Raten.

Die bei der Anpassung erhaltene Aktivierungsenergie für die Diffusion beträgt etwa 0.48 eV. Dieser Wert ist doppelt so groß wie die aus Viskositätsmessungen abgeleitete Aktivierungsenergie. Außerdem ergibt sich bei allen Fits eine magnetische Rate, die bei hohen Temperaturen dominant ist im Vergleich zur Quadrupolrate. Bei $743^{o}K$ ist sie etwa um einen Faktor 10^{2} größer als die mit der quasimolekularen Näherung berechnete Rate.

V Schlußbemerkung

Die Diskussion zeigt, daß es gegenwärtig nicht möglich ist, die beobachtete Relaxationsrate eindeutig zu erklären.

Die Größe der Relaxationsrate kann gut mit drei verschiedenen Näherungslösungen erklärt werden. Eine der Näherungen sagt ausdrücklich einen sehr geringen Beitrag der magnetischen Rate voraus. Die Temperaturabhängigkeit der Relaxationsrate konnte befriedigend mit einem Diffusionsansatz für die Quadrupolrate und einem Korringa- bzw. modifizierten Korringaansatz für die magnetische Rate gefittet werden. Bei diesem Modell ergibt sich allerdings ein großer Beitrag der magnetischen Rate, die bei hohen Temperaturen sogar dominiert.

Diese Diskrepanz kommt wahrscheinlich daher, daß die Quadrupolrate nicht mit einem solchen einfachen Diffusionsansatz (4-36) beschrieben werden kann. Schwierigkeiten beim Intepretieren der Relaxationsrate mit einem solchen Ansatz treten z.B. in den Systemen ^{207}PoBi (RieG 75) und ^{114}SbSn (BräD 75) auf. Die Temperaturabhängigkeit der Quadrupolrate muß infolgedessen durch einen allgemeineren Ausdruck als (4-36) beschrieben werden, der allerdings komplizierter ist. Die genannten Beispiele können mit dem allgemeinen Ansatz (4-7) erklärt werden (NisR 75). Wir können diesen Ansatz für das XeTe-System nicht anwenden, da die dafür vorliegenden Daten unzureichend sind.

Eine andere Möglichkeit, die Diskrepanz aufzuklären, bieten die Messungen der Knightshift. Die nach Gl. (4-3) aus den unterschiedlichen Ergebnissen der magnetischen Rate (siehe 4-20 und 4-41) abgeleiteten Werte für $k(\alpha)K^2$ betragen $9.5 \cdot 10^{-8}$ und $2.0 \cdot 10^{-5}$ bei $1050^{o}K$. Da bei dieser Temperatur flüssiges Tellur bereits metallisch ist, nehmen wir für $k(\alpha)$ den Wert eines normalen flüssigen Metalls von 0.8 (Seym 74)[+], da der wirkliche Wert für das XeTe-System bisher unbekannt ist. Mit diesem Wert beträgt die Knightshift 0.035% bzw. 0.50%. Die zur Zeit laufenden Messungen der Knightshift könnten einen besseren Aufschluß über die Richtigkeit des einen oder des anderen Modells geben.

[+]siehe (Warr 71) und (Warr 72):
Für flüssiges Tellur (TeTe-System) ergibt sich durch Extrapolation für $k(\alpha)$ ein Wert von 0,8 bei $1050^{o}K$.

VI Anhang

VI-1 Beimischungskoeffizient $(f_{6s})^2$

Betrachten wir H' als den Störoperator der Wechselwirkungsenergie φ zwischen einem Xenonatom und einem Telluratom, so können die gestörte Wellenfunktion und Energie des Xenonatoms nach der Störungstheorie folgendermaßen beschrieben werden (Schi 68);

$$\Psi=\alpha_0 + \sum_k \frac{\langle k|H'|0\rangle}{E_0-E_k}\alpha_k + \sum_k \sum_n \frac{\langle k|H'|n\rangle \langle n|H'|0\rangle}{(E_0-E_k)(E_0-E_n)}\alpha_k - \sum_k \frac{\langle k|H'|0\rangle\langle 0|H'|0\rangle}{(E_0-E_k)^2}\alpha_k \qquad (6\text{-}1)$$

$$E = E_0 + \langle 0|H'|0\rangle + \sum_n \frac{|\langle 0|H'|n\rangle|^2}{E_0-E_n} \qquad (6\text{-}2)$$

Hierin ist Ψ bereits normalisiert, $|0\rangle$ bzw. $|k\rangle$ oder $|n\rangle$ repräsentiert den Grundzustand α_0 bzw. die angeregten Zustände α_k oder α_n, E_o bzw. E_k repräsentiert die entsprechende Energie.

Wir betrachten hier nur das Hyperfeinfeld am Xe-Kernort und nicht das Hyperfeinfeld am Te-Kernort. Daher wird hier nur die Wellenfunktion bzw. die Energie des Xe-Atoms und nicht der Gesamtzustand des XeTe-Systems berücksichtigt. Die Bindungsenergie φ des XeTe-Systems wirkt hier als kleine äußere Störung der ursprünglich kugelsymmetrischen Zustandsfunktion des Xenonatoms.

Aus Symmetriegründen ist $\langle 0|H'|0\rangle = 0$, so daß die Störenergie nur in zweiter Ordnung auftritt. Dieser Term repräsentiert die Bindungsenergie φ. Wie bereits diskutiert, berücksichtigen wir außer dem Grundzustand $|5p^6\rangle = |\alpha_0\rangle$ nur den angeregten Zustand $|5p^5 6s\rangle = \alpha_k = \alpha_n$, dessen Energieabstand $\Delta E = E_0 - E_k = E_0 - E_n = -8.5$ eV beträgt. Damit reduzieren sich die Gleichungen (1) und (2) zu:

$$\Psi = \alpha_0 + \frac{\langle 5p^5 6s|\ H'|5p^6\rangle}{E} + \frac{\langle 5p^5 6s|H'|5p^5 6s\rangle\ \langle 5p^5 6s|H'|5p^6\rangle}{(\Delta E)^2} \qquad (6\text{-}3)$$

$$E = E_0 + 0 + \frac{|\langle 5p^6|H'|5p^5 6s\rangle|^2}{\Delta E} = E_0 + \phi \qquad (6\text{-}4)$$

Daraus folgt für den Beimischungskoeffizienten $(f_{6s})^2$:

$$(f_{6s})^2 = \frac{|\langle 5p^5 6s|H'|5p^6\rangle|^2}{(\Delta E)^2} = \frac{\phi}{\Delta E}$$

VI-2 Parameter des modifizierten Buckingham-Potentials des XeTe-Systems

Wir betrachten zunächst das anziehende Van der Waals-Potential (siehe Gl. 4-18), das die Dispersionsenergie zweier Atome mit den statischen Dipol-Polarisierbarkeiten α_1 und α_2 im Abstand r repräsentiert (HirC 64, S. 30)

$$\phi_{VdW} = -\frac{3}{2} \frac{\varepsilon_1 \cdot \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \alpha_1 \cdot \alpha_2 / r^6 \qquad (6\text{-}5)$$

Hierin ist ε_1 bzw. ε_2 empirische Konstante, die etwa gleich der Ionisationsenergie des Atoms 1 bzw. Atoms 2 ist.

Die statische Polarisierbarkeit des freien Xenonatoms ist nach (FeiJ 69)

$$\alpha_{Xe} = 6.01 \text{ Å}^3 \qquad (6\text{-}6)$$

und die empirische Konstante C ist 287 eV/Å^6 (MasR 54). Aus (6-5) läßt sich die Konstante

$$\varepsilon_{Xe} = 10.6 \text{ eV} \qquad (6\text{-}7)$$

ableiten, die etwa gleich der Ionisationsenergie (12,1 eV) des Xenonatoms ist.

Da die Polarisierbarkeit des flüssigen Tellurs bisher nicht gemessen wurde, nehmen wir einen Wert

$$\alpha_{Te} = 25 \text{ Å}^3 \qquad (6\text{-}8)$$

der etwa so groß wie die Polarisierbarkeit des freien Na-Atoms (LanB 2) ist. Für die empirische Konstante ε_{Te} des flüssigen Tellurs nehmen wir den Wert

$$\varepsilon_{Te} = 6.0 \text{ eV} \tag{6-9}$$

Zum Vergleich weisen wir auf die Ionisationsenergie des freien Telluratoms von 9.1 eV und die Austrittsarbeit des Tellurkristalls von 4.7 eV hin.

Damit ergibt sich die gesuchte empirische Konstante C in Gl. (6-5) für das XeTe-System zu

$$C_{XeTe} = 866 \text{ eV/Å}^6 \tag{6-10}$$

Weiterhin wollen wir das abstoßende Austausch-Potential (siehe Gl. 4-18) betrachten:

$$\varphi_{AUS} = B \cdot e^{-A \cdot r}$$

Nach (HirC 64, S. 26) kann man hier auch einfache Kombinationsansätze für die Konstante A machen:

$$A = \sqrt{\frac{2}{e^2 a_0}} \cdot \left(\sqrt{E_1} + \sqrt{E_2} \right) \tag{6-11}$$

Hierin ist E_1 bzw. E_2 die Ionisationsenergie des Atoms 1 bzw. Atoms 2, a_o ist der Bohrradius. Für das XeTe-System ergibt sich

$$A = 2.93/\text{Å}$$

Die Konstante B für das XeXe-System ist 7541 eV (MasR 54), Weil sich der entsprechende Wert für das XeTe-System nicht durch einen einfachen Ansatz abschätzen läßt, nehmen wir einen etwas kleineren Wert (wegen der offenen Schalen des Telluratoms):

$$B_{XeTe} = 6000 \text{ eV} .$$

Das modifizierte Buckingham-Potential für das XeTe-System:

$$\phi(r) = B\, e^{-A\, r} - C/r^6$$

hat somit die folgenden Konstanten:

$$A = 2.93 \text{ Å}$$

$$B = 6000 \text{ eV}$$

$$C = 866 \text{ eV/Å}^6 .$$

VI-3 Aktivierungsenergie der thermisch aktivierten Prozesse in flüssigem Tellur

Für die genaue Bestimmung der Aktivierungsenergie in Gl. (4 -36a) muß die Diffusionskonstante D(T) in einem großen Temperaturbereich gemessen werden. Eine direkte Messung D(T) in flüssigem Tellur im Temperaturbereich vom Schmelzpunkt bis 1050°K existiert bisher nicht. Lediglich hatten Kurlat et al. (KurP 72) die Selbstdiffusionsrate in einem kleinen Temperaturbereich von 733°K bis 814°K mit der radioaktiven Tracermethode gemessen. Als Charakteristikum ergibt sich eine abrupte Änderung der Diffusionskonstante D bei etwa 755°K. Die bis zu diesem Punkt kontinuierlich mit einer hohen Aktivierungsenergie von 1.54 eV (vgl. Gl. 4 -35) ansteigende Diffusionskonstante wird von diesem Wert an nahezu temperaturunabhängig, d.h. von 755°K bis 814°K unterliegt die Diffusionsrate einer nur geringfügigen Änderung (siehe Abb. VI-a). Eine abrupte Änderung der Relaxationsrate im Temperaturbereich T_M - 800°K wurde aber nicht beobachtet.

Da zwischen der Diffusionskonstante D und der Viskosität eine direkte Beziehung $D(T) \sim k_B T/\eta(T)$ (HirC64) besteht, könnte die Aktivierungsenergie der Diffusion aus der Viskositätsmessung bestimmt werden. Im Gegensatz zur von (KurP 72) gemessenen Temperaturabhängigkeit der Diffusionskonstanten D(T), ist die Viskositätsmessung von (BluR 53) unterhalb 790°K zweideutig (siehe Abb. IV-b). Kurve 1 zeigt ebenfalls einen steil ansteigenden Verlauf

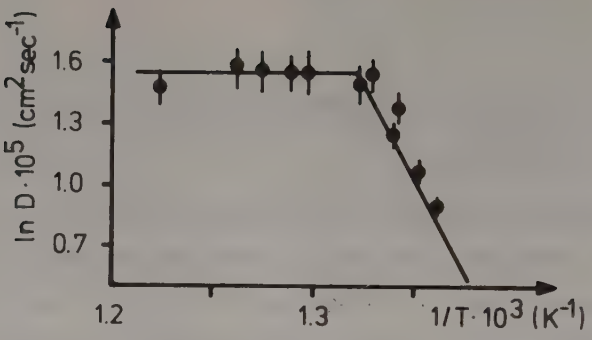


Abb. VI-a Diffusionskonstante als Funktion der Temperatur nach (KurP 72)

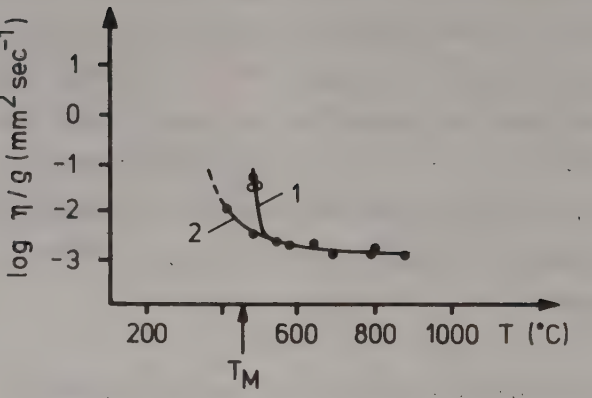


Abb. VI-b Viskosität als Funktion der Temperatur nach (BluR 53)

bis etwa 760°K, während Kurve 2 eine allmähliche Änderung der Viskosität wiederspiegelt, und zwar bis etwa 40°K unterhalb des Schmelzpunktes. Es ist anzunehmen, daß Kurve 2 die Messung wiedergibt, die von höheren zu niederen Temperaturen verläuft. Die Meßpunkte bei etwa 685°K sind dann auf Messung in der unterkühlten Phase zurückzuführen. Die Meßpunkte der Kurve 1 beginnen erst bei Temperaturen oberhalb des Schmelzpunktes. Vermutlich wurden diese Messungen durch die Aufwärmung der Tellurprobe gewonnen.

Aus der Arbeit (KurP 72) ist nicht zu ersehen, ob die Probe nur aufgewärmt oder zunächst auf eine hohe Temperatur und dann abgekühlt wurde; d.h. es geht nicht aus der Arbeit hervor, ob das Resultat in (KurP 72) Kurve 1 oder Kurve 2 von (BluR 53) entspricht.

Um die Aktivierungsenergie der Selbstdiffusion im uns interessierenden Bereich abzuschätzen, scheint uns deshalb die Viskositätsmessung von (BluR 53) geeigneter zu sein (Abb. VI-**b**, Kurve 2) als die Diffusionsmessung von (KurP 72), da die in dieser Arbeit vorliegende Relaxationsmessung eine allmähliche Änderung der Relaxationsrate zeigt. Daraus läßt sich die Aktivierungsenergie W = 0.24 eV ableiten.

Empirisch läßt sich W aus der Systematik der Aktivierungsenergie der Selbstdiffusion in flüssigen normalen Metallen als Funktion der Schmelzpunkte abschätzen (Nach 67). Für flüssiges metallisches Tellur ergibt sich daraus W = 0.20 eV.

In flüssigem Tellur treten komplizierte Strukturänderungen auf, die möglicherweise Einfluß auf die Relaxation haben. Anhand der Messungen der elektronischen Transportgrößen (elektrische Leitfähigkeit, Hallkonstante und Thermokraft) sowie der Annahme, daß flüssiges Tellur aus Kettenresten, einzelnen Atomen, Ionen und freien Elektronen besteht, haben Tieche und Zareba (TieZ 63) die Aktivierungsenergie für die Auflösung der Ketten in einzelne Atome W = 0.64 eV ermittelt.

Zum Schluß weisen wir darauf hin, daß die Aktivierungsenergie für die Änderung der Anzahl der Atome mit zwei nächsten Nachbarn auf Atome mit drei nächsten Nachbarn (siehe CabF 71) 0.20 eV beträgt. Tabelle (VI-A) gibt einen Überblick über die Aktivierungsenergien W, die aus den verschiedenen thermisch aktivierten Prozessen abgeleitet werden.

Tabelle (IV-A): Aktivierungsenergie W, die den verschiedenen thermisch aktivierten Prozessen in flüssigem Tellur entspricht

W (eV)	aus (Messungen) der	Temperaturbereich	Literatur
0.24	Viskosität (T)	723 - 1000°K	BluR 53
0.20	Systematik der Aktivierungsenergie der Selbstdiffusion der flüssigen normalen Metalle als Funktion deren Schmelzpunkte	200 - 1800°K	Nach 67
0.20	Änderungen der Anzahl der Atome mit drei nächsten Nachbarn	723 - 1200°K	CabF 71
0.64	elektronische Transportgrößen	723 - 1200°K	TieZ 63
1.54	Selbstdiffusion	723 - 755°K	KurP 72

VII Literaturverzeichnis

AbrP 53 Abragam, A., Pound, R.V.
Phys. Rev. 92, 943 (1953)

Adri 65 Adrian, F.J.
Phys. Rev. 138, 403 (1965)

AriH 54 Arima, A. und Horie, H.
Prog. Theor. Phys. 32, 623 (1954)

AxmG 68 Axmann, A., Gissler, W., Collmar A., and Springer, T.
Dic. Faraday Soc. 50,74 (1970);
4th OAEA Symp. Neutron Inel. Scatt. STI/PUB/187,245 (1968)

BerE 74 Bertschat, H., Echt, O., Haas, H. Pleiter, F., Recknagel, E. Schlodder, E., Spellmeyer, B.
Proc. Int. Conf. on Hyperfine Interactions, Uppsala, 36 (1974) and Hahn-Meitner-Institut Berlin, Jahresbericht 1974, Bereich Kern- und Strahlenphysik, S. 86

BeyR 72 Beyer, R.T., Ring, E.M.
Liquid Metals, Editor S.Z. Beer,
New York: Marcel Dekker 1972

BloF 71 Bloch, D.H., Frosch, D., Juschke, Pauli, H., Rinsdorf, E.
Hyperfine Interactions in excited nuclei,
Vol. 1, ed. G. Goldring and R. Kalish (Gordon & Breach, N.Y. 1971) p. 356

BluR 53 Blum, A.I. and Regel, A.R.
Zh. Tekhn. Fiz. 23, 779 (1953)

BorR 67 Borsa, F. and Rigamonti, A.
Nuovo Cimento 488, 144 (1967)
Bonera,G., Borsa, F., and Rigamonti, A.
In Magnetic Resonance and Radiofrequency Spectroscopy,
ed. by P. Averbuch (North Holland, Amsterdam, 1969)

BräD 75 Bräuer, N., Dimmling, F., Hartrott, M., v.,
Nishiyama, K., Riegel, D.
Journ. of Hyperfine Interactions, Leuven, 99 (1975)

BriH 67 Brinkmann, H.F., Heiser, C., and Fromm, W.D.
Nucl. Phys. Ag6 318 (1967)

BusG 55 Buschert, R., Geib, J.G., Horovitz, K.L.
Phys. Rev. 98, 1157 (1955)

ByrM 64 Byron, F.W., McDermott, M.N., Novick, R., Perry, B.W.,
and Salomon, E.B.
Phys. Rev. 136, B 1654 (1964)

CabF 69 Cabane, B. and Froidevaux, C.
Phys. Letters 29A, (1969)

CabF 71 Cabane & Friedel
Journ. de Physique 32 73 (1971)

CooC 61 Cooper, C.D., Coob, G.C., and Tolnas, E.L.
Journ. Mol. Spect. 7, 223 (1961)

DimR 75 Dimmling, F., Riegel, D., Rensfelt, K.G., and Herrlander, C.J.
Phys. Lett. 55B 293 (1975)

Egel 67 Egelstaff, P.A.
An Introduction to Liquid State, p. 131,
London-New York: Academic Press 1967

FauM 61 Faust, W.L., McDermott, M.N.
Phys. Rev. 123, 196 (1961)

FreK 61 Freed, N., and Kisslinger, L.S.
Nucl. Phys. 25, 611 (1961)

FeiJ 69 Feiock, F.D., Johnson, W.R.
Phys. Rev. 187, 167 (1969)

GabS 74 Gabriel, H.,
Phys. Stat. Sol. 64, K63 (1974)
Gabriel, H. and Schirmacher, W.
Proc. 18th Ampere Congress, Nottingham 331-2 (1974)

GlaC 69 Glazov, V.M., Chizhevskaya, S.N., Glagoleva, N.N.
Liquid Semiconductors, p. 331, New York 1969:
Plenum

HarH 76 Hartrott, M., v., Hadijuana, J., Nishiyama, K.,
Quitmann, D., Riegel, D., Schweickert, H.
wird veröffentlicht in Z. Phys. 1976

Harr 66 Harrison, W.A.
Pseudopotential in the Theory of Metals,
p. 41, New York-Amsterdam: Benjamin 1966

HirC 64 Hirschfelder, J.O., Curtiss, C.F., and Bird, R.B.
Molecular Theory of Gases and Liquids,
2nd ed. Wiley, New York 1964

HobS 74 Hobsen, J.B.
Critical Rev. Sol. St. Sci. 4, 221 (1974)

KerL 71 Kerek, A., Luukko, A., Grecescu, M., and Sztarkier, J.
Nucl. Phys. A172, 603 (1971)

KisS 60 Kisslinger, L.S., and Sorensen, R.A.
Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 32 No.9 (1960)

Kopf 58 Kopfermann, H.
Nuclear Moments, N.Y. Acad. Press 1958

Korr 50 Korringa, J.
Physica 16, 601 (1950)

KurP 72 Kurlat, D., Potard, C.,Hicter, P., and Bonnier, E.
C.R. Acad. Sa. 274C,1009 (1972)

LanB 1 Landolt-Bornstein
6. Auflage, I. Band, 4. Teil, S. 532

LanB 2 Landolt-Bornstein
6. Auflage, I. Band, 1. Teil, S. 401

LauM 69 Lauleinen, N.S. and Mc.Dermott, M.N.
Phys. Rev. 177, 1615 (1969)

MasR 54 Mason, E.A, and Rice, W.E.
J. Chem. Phys. 22, 843 (1954)

McDN 63 McDermott, M.N., Novick, R., Perry, B.W., and Salomon, W.E.
Phys. Rev. 134, B25 (1963)

Mitc 57 Mitchell, A.H.
J. Chem. Phys. 26, 1714 (1957)

Nach 67 Nachtrieb, N.H.
Advan. Phys. 16, 309 (1967)

NisR 75 Nishiyama, K., Riegel, D.
Journ. of Hyperfine Interactions, Leuven, 105 (1975)

Obat 64 Obata, Y.
J. Phys. Soc., Japan 19 2348 (1964)

PauW 65 Paul, R., and Watson, W.W.
Bull. Am. Phys. Soc. 10, 1127 (1965)

Pin 55 Pines, D.
Solid State Physics Vol. I, p. 367
(Academic Press, Inc., N.A. 1955)

Reck 72 Recknagel, E.
Rev. Roum. Phys. 17, 473 (1972)

Rie 73 Riegel, D., Bräuer, N., Dimmling, F., Focke, B., and Nishiyama, K.
Phys. Lett. 46B 170 (1973)

Rie 75 Riegel, D.
Physica Scripta 11, 228 (1975)

RosG 67 Rossini, F.A., Geissler, E.G., Dickson, E.M, and Knight, W.D.
Adv. Phys. 16, 287 (1967)

Schi 68 Schiff, L.I.
Quantum Mechanics, 3th Edition, McGraw-Hill/ Kogakusha, S 247

Schi 76 Schirmacher, W.
J. Phys. F.: Metal Phys. Vol. 6, No. 5, L 157 (1976)
Schirmacher, W.
wird veröffentlicht in Ber. Bunsenges. Phys. Chem. (1976)

Seym 74 Seymour, E.F.W.
in 5th Int. Symposium on Magnetic Resonance, Bombay, (1974)

Shar 67 Shardanand
Phys. Rev. 160, 67 (1967)

Shi 71 Shirley, V.S.
Hyperfine Interactions in Excited Nuclei,
Ed. Goldring & Kalish, 4, 1255 (1971)

Shol 74 Sholl, C.A.
Journ. Phys. F4, 1556 (1974)
Sholl, C.A.
J. Phys. F.: Metal Phys. Vol. 6, No.5, L160 (1976)

Si1C 72 Silverans, R.E., Coussement, R., Schoeters, E., and Vanneste, L.
Nucl. Phys. A193, 367 (1972)

Si1C 73 Silverans, R.E., Coussement, R., Schoeters, E. and Vanneste, L.
Nucl. Phys. A210, 307 (1973)

StoP 54 Stoyle, R.J., Blin und Perks, M.A.
Proc. Phys. Soc. 67, 885 (1954)

TieZ 63 Tieche, Y., and Zareba, A.
Phys. Kond. Mat. 1, 402 (1963)

TouC 72 Tourand, G. Cabane, B., Breuil, M.
J. Non Crst. Sol. 8-10, 676 (1972)

Vine 58 Vineyard, G.H.
Phys. Rev. 110, 999 (1958)

WagP 71 Wagner, H.F., Popp, M., Forker, M.
Z. Phys. 248, 195 (1971)

WarC 69 Warren, Jr., W.W., and Clark, W.G.
Phys. Rev. 177, 600 (1969)

WarN 66 Warren, Jr.,W.W., Norberg, R.E.
Phys. Rev. 148, 402 (1966)

Warr 71 Warren, Jr., W.W..
Phys. Rev. 3B, 3708 (1971)

Warr 72 Warren, Jr., W.W.
Phys. Rev. 6B, 2522 (1972)

Warr 74 Warren, Jr., W.W.
Phys. Rev. 10A, 657 (1974)

Weas 71 Weast, R.C.
Hd. of Chemistry and Physics, 51st ed. 1970-1971,
F 158

Yam 67 Yamazaki, T.
Nucl. Data A3, 1 (1967)

Lebenslauf

Name:	Jose Hadijuana
Geburtsdatum:	20.11.1942
Geburtsort:	Bandung, Indonesien
1948-1960	Schulausbildung in Bandung mit Abitur-Abschluß
1960-1964	Studium der Physik am "Institut Teknologie Bandung"
April 1963	Diplom-Vorprüfung in Physik
März 1964	Diplom-Hauptprüfung 1. Teil
1967-1971	Studium der Physik an der Technischen Universität Berlin
Dez. 1967	Diplom-Vorprüfung in Physik
1968-1971	Tutor am II. Physikalischen Institut der Technischen Universität Berlin
April 1969 - Nov.1969	Studienarbeit: "Elektronenmikroskopische Untersuchungen magnetischer Bereiche in dünnen Kobaltaufdampfschichten bei tiefen Temperaturen"
Dez. 1969 - Juni 1971	Diplomarbeit: "Levelcrossing Untersuchung zum Stark-Effekt der Hyperfeinstruktur des 4p $^2P_{3/2}$-Terms im Na-I-Spektrum"
Oktober 1971	Diplomhauptprüfung
Dez. 1971 - Sept. 1975	Wissenschaftlicher Angestellter an der WE 1 A des Fachbereichs Physik, Institut für Atom- und Festkörperphysik der Freien Universität Berlin.

Diese Arbeit führte ich als Mitglied der Gastgruppe des Instituts für Atom- und Festkörperphysik (WE 1 A) des Fachbereichs Physik der Freien Universität Berlin am Zyklotron der Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe, aus.

Herrn Prof. Dr. D. Quitmann danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit und die ständige Förderung durch zahlreiche Diskussionen und viele wertvolle Ratschläge. Ebenfalls danke ich Herrn Dr. M. v.Hartrott für die hilfreiche Unterstützung und Diskussionen, die diese Arbeit mit ermöglichten.

Ferner bedanke ich mich bei den anderen Mitgliedern der Gastgruppe, den Herren: N. Bräuer, Th. Kornrumpf, K. Nishiyama, D. Riegel, J. Roßbach sowie Herrn W. Schirmacher für die Zusammenarbeit.

Ich danke Frau G. Sedatis und Herrn S. Lemma für die Anfertigung der zahlreichen Abbildungen bzw. Fotos. Frau A. Faltenbacher, Frau D. Kline und Frau K. Lange danke ich für das Schreiben des Manuskriptes. Herrn Gieseler und den Mitarbeitern der Werkstatt danke ich für die Unterstützung bei der Targetherstellung.

Diese Arbeit wurde 1972 und 1973 vom Bundesministerium für Technologie und 1974 und 1975 von der Deutschen Forschungsgemeinschaft (Sfb 161) unterstützt.

T.O.M. DISSERTATIONSDRUCK · Lützowstr. 102 - 104 · 1000 Berlin 30 · ☎ 030 / 2 62 40 77